

# 電中研レビュー No.51 2004.3



財団法人 電力中央研究所

# 電中研レビュー第51号 目次

燃料電池発電技術(MCFC 実用化への挑戦)

編集担当 エネルギー化学部長 渡辺 夫

巻頭言 =		∄ 2
電中研「	「燃料電池発電技術研究」のあゆみ	4
はじめに	こ	; 6
第1章	なぜ MCFC か(燃料電池としての MCFC の魅力)	7
1 — 1	燃料電池発電とは	9
1 — 2	様々な燃料電池	12
1 — 3	MCFC の基本原理	15
1 — 4	発電システム基本構成	17
コラム	1 : HHV ? LHV ? DC 端? 送電端?(熱効率の定義)	19
コラム	2:炭酸塩とは?	20
第2章	これまでの MCFC 開発(その成果と課題)	21
2 — 1	内外における MCFC 開発の経緯	23
2 — 2	1,000kW 発電プラントの成果と課題	26
2 <del>-</del> 3	高効率発電実用化への道筋	28
2 <del>-</del> 4	現在の国の開発プロジェクト	29
2 <del>–</del> 5	MCFC の位置付けと開発の方向性	33
コラム	3:外部改質と内部改質	35
第3章	実用化へのキーテクノロジー(実用レベルを支える基盤技術) …	37
3 — 1	性能解析と評価技術	39
3 — 2	セルの高性能化と長寿命化	44
3 — 3	大出力化のためのスタック技術	50
コラム	4 :炭素析出とその抑制	56
第4章	天然ガスからバイオ・廃棄物・石炭ガスへ(適用拡大を目指す	
	応用技術)	57
4 — 1	低カロリー燃料の適用	59
4 — 2	供給ガス中不純物成分の影響	63

4 — 3	高性能ガス精製技術	68
4 – 4	実電池特性に基づく発電システムの構築	72
コラム	5 : MCFC による炭酸ガス濃縮	77
第5章	初期導入機と将来展開(実用化のための製造技術と導入シナリオ)	79
5 <del>–</del> 1	初期導入機の実際	81
5 <del>-</del> 2	導入を支える製造技術	82
5 <del>-</del> 3	実用プラントの概念設計と将来像	84
5 <b>—</b> 4	実用化へのシナリオ	92
5 <del>-</del> 5	これからの研究展開	94
コラムの	5 : MCFC 研究の草創期と実用化への期待	96
付録 も	うひとつの高温型燃料電池 - SOFC	97
付-1	SOFC の特徴と位置づけ	99
付-2	基盤技術への取り組み1	04
おわりに	─────────────────────────────────────	08
引用文献	・資料等1	110
略語一覧	1	14

## 表紙絵:燃料電池による未来都市への電力・熱供 給イメージ

- 上右: LNG 利用火力代替 MCFC 発電プラント(300MW 級)の概念図
- 中 : 天然ガス利用 MCFC プラントの概念図(左: 10MW 級、右: 7MW 級)
- 下左: 10kW 級 MCFC スタック発電設備 ((財)電力 中央研究所横須賀研究所構内)
- 下中: 250kW 級 MCFC 高積層スタック
- 下右:300kW級加圧小型発電システム(溶融炭酸 塩型燃料電池発電システム技術研究組合川 越発電試験所構内(中部電力(株)川越火力 発電所内))



# MCFCと'愛'地球博



過日、「ノーベル賞受賞者を囲む技術フォーラ ム」に出席する機会を得ました。

パネラーはC<sub>60</sub>(フラレーン)の発見によりノー ベル化学賞を受賞した英国のハロルド・クロート 氏、また、不斉合成理論で同賞を受賞した野依良 治氏、さらに次期ノーベル賞候補として名声の高 い、青色発光ダイオードの赤崎勇氏およびカーボ ンナノチューブの飯島澄男氏であり、まさに内外 の知の集合でありました。

各氏の科学技術に取り組む哲学等を拝聴でき、 中部電力において技術開発の責任者を拝命してい る私にとって、極めて感慨深く、かつ、今後への

示唆を得ることができました。各氏の研究領域には差異があるものの、真理を探究す る各氏の発言には多くの共通項が見受けられました。例えば、研究への取り組み姿勢 としては、「好奇心」旺盛であること、**諦めない(やり抜く)**こと、また、自分の仕 事に惚れ込む(美しいと思う)ことなどを全員が強調されておりました。さらに、優 れた研究者に要求される能力はSerendipity(当てにしないものを偶然にうまく発見 する能力)であり、また研究領域としては「人のやらない領域」を追求せよと力説さ れ、その中でも特に**化学・物理学・生物学の融合領域**が魅力に満ちた研究領域とのこ とでした。

今回の電中研レビューの主題である溶融炭酸塩形燃料電池(MCFC)について、ノー ベル賞受賞者の言に映して考えてみると、MCFCの基本原理は1920年代に既に開発 され、それ以来80余年、国内外の機関や研究者が諦めずにやり抜いた結果により今 日の技術レベルに到達したわけであります。また、燃料としてバイオマス燃料を想定 すれば、将に、この技術は、化学・物理学・生物学の融合領域の技術といえます。 MCFCの特長については以下の各章で、それぞれの専門家の皆様が詳述することになりますが、極めて概括的に俯瞰してみますと、発電効率が高く、熱電供給が可能で総合熱効率が高いことが最大の特長と言えましょう。また、多様な原燃料の利用が可能であるとともに騒音や排出物等の環境調和性が優れていること、さらに、燃料の内部改質が可能であり、かつ貴金属触媒が不要であることも大きな利点と言えましょう。将来、MCFCが大容量化すれば、21世紀の地球環境問題の最大の課題であるCO<sub>2</sub>問題も、MCFCを使うことによりCO<sub>2</sub>の濃縮回収が可能になり、地層や深海への固定処分につながる有効な環境技術の一つに発展することも期待されております。

来年3月から半年間、名古屋市の東部に位置する瀬戸丘陵で、万国博覧会'愛'地 球博が開催されます。メインテーマは「自然の叡智」と銘打って環境をテーマとした 博覧会です。我々、電力会社も共同で「ワンダーサーカス・電力館」を出展すること といたしております。会場への電力供給の主体は当然のことながら商用電源でありま すが、「政府館」の消費電力の一部にNEDOの補助を受けて、会場で発生する生ゴミ から取り出したメタンガスを燃料として300kW MCFCで発電し供給することとして おります。また、「電力館」へは50kW 固体酸化物形燃料電池(SOFC)を設置し空 調等への電力供給をすることとしています。

万博は国内外から1500万人の入場者を予定しており、開館期間を通して、安定運転することにより、日本の燃料電池発電技術の確かさを全世界にアピールするとともに、同技術のさらなる発展に寄与してまいりたいと考えております。

中部電力(株)技術開発本部 常務取締役本部長

清水 眞 男

# 電中研「燃料電池発電技術研究」のあゆみ

西暦	当研究所の状況	我が国の状況	国外の状況
1801 1839 1921 1946 1952			<ul> <li>Davy(英)燃料電池原理発表(炭素/空気)</li> <li>Grove(英)最初の燃料電池実験</li> <li>Baur(独)MCFCの原形実験</li> <li>Davtyan(雷アトリクス型MCFC 実験</li> <li>Bacon(英)AFCの原形を実験、</li> </ul>
1958			特許取得 ・ Broers(蘭)多孔質 Ni 電極 MCFC 安略
1965			<ul> <li>・ GE 社の PEFC がジェミニ 5 号に</li> <li>塔載(初の実用化)</li> </ul>
1967			・[TARGET 計画で PAFC 開発開 始(米)]
1968			・UT社(Bacon 特許取得)のAFC がアポロ7号に搭載
1976 1977	<ul> <li>・ 2kW AFC(富士電機製)を電力 系統模擬送電設備に組み込み系統 擾乱時の制御方式検討</li> </ul>		・ [ ERDA (米)の開発計画開始 ]
1979	ן אַאַוּאַדע געשונאָרע ניאַטאַאַנ	・ [ サンシャイン計画で AFC 研究 開発開始 ]	<ul> <li>・ [公益事業規制政策法(PURPA法)制定、分散電源積極導入開始(米)]</li> </ul>
1981	・ MCFC ムーンライト(ML)計画 参画 ・富士電機、日立と MCFC 共同研究	・[ムーンライト(ML)計画で燃料 電池開発本格開始(AFC、PAFC、 MCFC、SOFC)]	<ul> <li>[DOE が開発継続,、MCFC 開発 開始、EPRI が開発開始(米)]</li> <li>Westinghouse Electric (WH)社 (米)円筒縦縞型 SOFC 開発着手</li> </ul>
1983	開始 ・東芝、三菱電機と MCFC 共同研究 開始 ・ MCFC1kW 級 MCFC 評価試験設		・Ballard 社 PEFC 開発開始
1984	備設置 ・ IHI と MCFC 共同研究開始 ・ MCFC 単セル評価法開発、基本性 能解明	・PAFC4.5MW プラント発電(東京 電力/米 IFC 社製)	
1985	<ul> <li>・ MCFC、1kW 級スタック試験、大型化確認</li> <li>・ PAFC システム性能解析コード開</li> </ul>		
1986	<sup>光</sup> ・ MCFC <b>単セル用小型加圧試験装置</b> ・ MCFC <b>スタック標準試験法を提案</b> ・ SOFC 研究に着手	<ul> <li>500W 円筒横縞型 SOFC 開発(電総研)</li> <li>3kW 級 SOFC 運転試験(東京ガス,大阪ガス/米 WH 社製)</li> </ul>	<ul> <li>・[燃料電池の研究開発を開始(欧、CEC)]</li> <li>・[ECN(蘭)がMCFC研究開始]</li> <li>・[ボルタ計画(伊)開始、ENEA</li> </ul>
1987	・MCFC 加圧基本特性解明、メタネ ーションによる電圧飽和確認、抑 制法検討	<ul> <li>・ [系統連系ガイドライン制定]</li> <li>・ 1M WPAFC プラント 2 機発電 (ML計画)</li> <li>・ 10kW 級 MCFC 発電(ML 計画で 日立、東芝、独自に富士電機、三 芸習機 IUL)</li> </ul>	・ Ballard 社が Dow 膜による PEFC 発電 ・ ONSI 社(米) PAFC200kW プロ ト機(PC25型)開発
1988	<ul> <li>・ 10kW 級 MCFC スタック試験設備 設置</li> <li>・ MCFC7kW 常圧スタック試験(富 士電機製)、大型スタック基本特性 世場</li> </ul>	weikk、『『ク ・MCFC 研究組合設立(電中研、メ ーカー)	
1989	<ul> <li>・ MCFC6kW スタックによるガスリ サイクル運転研究、単セル非定常 モデル開発</li> <li>・ SOFC 材料開発開始</li> </ul>	<ul> <li>200kWPAFC 試験(東京電力、大阪ガス/米 ONSI 社製(PC25型))</li> <li>数 100kW 級 SOFC の研究開発開始(NEDO)</li> </ul>	<ul> <li>・[米公営電力組合(APPA)が燃料電池実用化方策公募(NOMO)]</li> <li>・[ARGE 計画で内部改質 MCFC 開発開始(独、デンマーク共同)]</li> </ul>
1990	<ul> <li>MCFC 性能相関式開発、性能決定 要因分析法開発</li> <li>MCFC 端部柔構造セパレータ開 発、Ni 短絡現象確認、MCFC 発電 システム解析コード開発</li> </ul>	<ul> <li>・ [燃料電池に関する技術基準制定]</li> <li>・ 30kW 内部改質 MCFC 試験(関西 電力/三菱電機)</li> <li>・ ナフサ燃料 10kWMCFC 試験(石 油産業活性化センター)</li> <li>・ 1kW 級 SOFC 試験(東京電力・ 電源開発/三菱重工(MHI)、中部 電力/MHI、東燃)</li> </ul>	<ul> <li>・[米水素ブログラム法制定]</li> <li>・[米加州がゼロ排出車(ZEV)計 画(2003 年導入)発表]</li> <li>・[NOMO の結果 ERC と電力・ガ スによる商業化グループ(FCCG) 設立]</li> <li>・ 20kW 級 SOFC の運転試験(米)</li> </ul>

MCFC **関係は太字**、政策関連は[]で示した。 MCFC :溶融炭酸塩形燃料電池、SOFC :固体酸化物形燃料電池、PAFC :りん酸形燃料電池、PEFC :固体高分子形 燃料電池、AFC :アルカリ形燃料電池

西暦	当 研 究 所 の 状 況	我が国の状況	国外の状況
1991	・100kW 級 MCFC スタック試験設 備設置	・PAFC 研究組合設立 ・11MWPAFC プラント発電(東京 雪力/米 JEC 社動)	・ENEA(伊)1MWPAFC 試験 (Ansaldo 社製/電池は IFC 製)
1992	<ul> <li>Li/Na 系電解質 MCFC 研究着手、 発電システム第一次概念設計</li> <li>SOFC ML 計画に参画</li> </ul>	<ul> <li>■ ML 計画に PEFC 開発を追加 ]</li> <li>「燃料電池フィールドテスト事業 開始(NEDO)]</li> </ul>	・ [ エネルギー政策法制定 ( 米 )]
1993	<ul> <li>200W SOFC スタック試作</li> <li>MCFC100kW スタック(日立製) 出力達成(MCFC 組合分担研究)</li> <li>MCFC Ni 短絡予測式開発、不純物の影響範価関始</li> </ul>	<ul> <li>         ・[余剰電力買取制度創設]         ・[ニューサンシャイン(NSS)計         ・ 回で開発継続]         ・[MCFC 研究組合改組(全電力参加))         ・)     </li> </ul>	・ [米政府次世代自動車開発計画 (PNGV)発表] ・ Daymlar Crysler 社と Ballard 社が 世界で燃料電池白動車の開発に差手
1994	<ul> <li>・ MCFC100kW スタック(IHI 製)</li> <li>5,100 時間運転達成(MCFC 組合 分担研究)</li> </ul>	ך את	スロ C 総合 电心口到中の用光に 目子
	<ul> <li>MCFC カソード反応理論に基づく 性能表示式開発、電極濡れ性評価 装置設置</li> <li>SOFC アノード新概念提案・高性 能実証</li> </ul>		
1995	<ul> <li>MCFC フレスセバレーダ(0.5m<sup>2</sup>) による 10kW 級スタック発電、ア ノード性能表示式の開発、スタッ ク 3 次元熱流動解析コード開発</li> <li>MCFC スタック内部 Ni 短絡寿命 予測法開発</li> </ul>	<ul> <li>・[電気事業法改正]</li> <li>・5MW、1MWPAFC プラント発電 (NEDO/PAFC 組合)</li> <li>・10kW 級常圧円筒型 SOFC の発電 試験(電源開発/MHI 製)</li> <li>・25kW 級 SOFC 試験(関西電力、 専ガス・ナガス/WH 24 割)</li> </ul>	・ [DOE が MCFC、SOFC を対象に PDI プログラム(製品化開発)開 始]
1996	・MCFC 高出力密度での寿命予測法 開発、Li/Na 系電解質スタック試験、 H <sub>2</sub> S 影響評価	・5kW 級平板形 SOFC 試験(中部 電力/MHI 製)	・ERC 社(米) MCFC 内部改質 2MW 機発電 ・ONSI社(米) PAFC200kW 新型 機(PC25C 型) 開発
1997	<ul> <li>MCFC 高圧 (5MPa) セル試験設備設置</li> <li>MCFC ネルンストロス解析、カソード水蒸気影響解析</li> <li>MCFC 寿命要因解析手法開発、内 第二輪輪公在モデル開発 フタッ</li> </ul>	・[ 地球温暖化防止京都会議( COP3 )]	• 250kWMCFC 機試験(米 MCP 社) • 常圧 100kWSOFC フィールド試験 (Westinghouse Electric 社)
1998	ク性能分析手法開発 ・高温状態電極直接観察装置導入 ・ MCFC 単セル寿命特性式開発、 Li/Na 系電解質 10kW 級スタック (0.5m <sup>2</sup> )1万時間運転実証 ・ SOFC NSS 計画参画(電池材料低 コスト化の研究)	・10kW 級加圧円筒形 SOFC の発電 試験(電源開発/MHI 製)	・1kW 級熱自立 SOFC の発電成功 (スイス Sulzer 社)
1999	・電極支持型 SOFC 開発(単セル) ・ MCFC <b>反応ガス遮断時特性解析</b> ・ SPring-8 を利用した SOFC 材料局 所構造解明	<ul> <li>MCFC1,000kW プラント(日立、 IHI)、200kW 内部改質スタック (三菱電機)出力達成(NEDO/</li> </ul>	・100kWMCFC <b>試験(伊/スペイン</b> 共同、Ansaldo 社製)
2000	・高温下の MCFC 電極内部直接観察 手法を開発 ・ MCFC に対する NH <sub>3</sub> 、NOx 影響 評価、実電池特性を反映した IG-	<ul> <li>・[ミレニアム計画で PEFC 開発が本格化]</li> <li>・ 15kW 級平板型 SOFC の発電試験(中部電力/MHI 製)</li> </ul>	・加圧 220kWSOFC の実証試験 (Siemens Westinghouse Power 社)
2001	MCFC システム解析 ・ MCFC Ni 短絡防止法の開発、不純 物複合効果試験、広負荷域対応発 零シューム 845	・加圧形内部改質 10k 級 SOFC の発 電試験(電源開発/MHI 製)	・ [SECA 計画(米)開始 ] ・ 250kW 内部改質ユニットフィール
2002	モンステム時付 ・ Li/Na 系 1m <sup>2</sup> 10kWMCFC スタッ クによる1万時間達成(MCFC 組 会公知研究)		
2003	• 高濃度 CO 燃料による MCFC スタ ック運転実証 • SOFC セラミクスインターコネク 夕開発、3 セルスタック試験	<ul> <li>[再生可能エネルギー利用法 (RPS法)発効]</li> <li>MCFC300kW ユニット(中部電力 新名古屋火力発電所内小型加圧シ ステム)</li> <li>1kW級SOFCの発電試験(関</li> </ul>	
2004	・ MCFC <b>スタック不純物試験</b>	電・果邦刀人・尿セフ)	

# は <sub>理事 横須賀研究所長</sub> 浜松 照秀



電力の生産・消費にあたっては、あらゆる国・地域に おいて省エネルギー、省資源化が重要であり、豊富かつ 安価な国産エネルギーの利用が可能な場合を除いて、エ ネルギー資源の多様化、エネルギーコストの抑制は経済 を支える基盤として重要と考える。わが国においても、 今後の電力需要増が鈍化すると予想される中でも、客観 的に省エネルギーでかつ温室効果ガス排出を抑えるには、 電力生産に、供給、需要(消費)の全体を捉えたエネル ギー需給全体(エネルギーチェーン)で評価・判断して いくことが必要であり、電源に求める特性・性能は吟味

が重要と考える。

水力発電、蒸気サイクルによる火力・原子力発電に次いで、シェアの面から第三の発電原理と期 待できる電気化学反応による直接発電の原理を応用した燃料電池発電は、環境性や電源規模のフレ キシビリティに優れた発電方式として技術的・経済的可能性に注目が集まっている。各種の燃料電 池発電方式の中から、とくに「高温型燃料電池」は、ガスタービンと組み合わせることによって通 常のガスタービンコンバインドサイクル発電を超える高効率化が期待でき、ガス化技術と組み合わ せることによって高効率発電の燃料多様化という、大きな魅力に富んでいる。

当研究所の燃料電池の研究は1979年に設置した「新発電特別研究室」に始まる。高温型燃料電池のうち溶融炭酸塩形燃料電池(MCFC)については、その将来性に着目して国の着手(ムーンライト計画)に先駆けて1981年から本格的に着手し、MCFC研究に積極的なメーカ各社との共同研究を通じて、草創期のMCFC技術を実用化が可能な水準に引き上げる基盤技術開発を先導してきた。

本レビューはこれまでのMCFCの開発成果の各論ならびに市場に導入される初期段階のプラントと将来展望について取りまとめたものである。天然ガスからバイオマス・廃棄物のガス化燃料まで幅広い燃料で大小さまざまな規模の高効率発電プラントが可能なMCFCの実用化に期待したい。



# なぜMCFCか(燃 料電池としての MCFCの魅力)

燃料電池は環境への影響が非常に少なく効率の高い発電装置として注目されてい る。そのうち、溶融炭酸塩形燃料電池(MCFC)は600~700 で動作する高温型であ り、電池自体の電圧が高く、高温の排ガスを用いてガスタービンを動作させる事もで き、複合発電としてさらに高い効率が得られる。また、様々な種類の燃料を用いる事 ができることも魅力の一つとなっている。炭酸塩を用いている事に特徴があり、炭酸 ガスを濃縮することもできる。 第1章 なぜ MCFC か (燃料電池としての MCFC の魅力) 目次

横須賀研究所 エネルギー化学部 上席研究員 麦倉 良啓 横須賀研究所 エネルギー化学部 主任研究員 吉葉 史彦

1 -	1	燃料電池発電とは	9
1 -	2	様々な燃料電池	12
1 -	3	MCFC の基本原理	15
1 -	4	発電システム基本構成	17
コラ	<b>ን</b> ፊ 1	: HHV ? LHV ? DC 端 ? 送電端 ? (熱効率の定義)	19
コラ	<b>54</b> 2	:炭酸塩とは?	20



麦倉 良啓(1986年入所) 入所以来、燃料電池の性能および寿命評価 に関連した研究、特に、性能表示式による MCFCの性能要因分析手法や、ニッケル短 絡寿命に関する予測式の開発を担当。また、 性能要因分析手法を発展させ、他の燃料電池 (PEFC、PAFC、SOFC)の性能評価に適用 することにも取り組んでいる。今後は、新型 燃料電池の開発にも注力して行きたい。

(1章全体、コラム2執筆)



吉葉 史彦(1993年入所) MCFCの大型スタック発電性能評価に関 する研究や、燃料電池発電システムの熱効率 解析等を実施してきた。今後は、10kW級ス タック、300kW小型発電システム、高圧モ ジュール発電システムの運転や熱収支解析の 経験を活かし、MCFCシステムの簡素化や MCFC発電システムの有効性を拡大する研 究を展開する。

(コラム1執筆)

# 1-1 燃料電池発電とは

燃料電池は、かつてはアポロ宇宙船やスペースシャト ルの電源として知られていたが、近年は、自動車に搭載 されたり家庭用に設置されるなどして、より身近な存在 となってきた。このように燃料電池が注目される理由と して、以下の魅力が挙げられる。

- ・燃料から電気に変換する効率が高い
- ・排出されるガスがクリーン
- ・幅広い分野に適用できる

このような特長は、クリーンな環境を確保しつつ現代 社会に不可欠なエネルギーを確保する手段として燃料電 池が最も適切な発電装置の1つと成り得ることを示して いる。

まず、燃料電池の歴史から振り返りたい。燃料電池は、 イギリスのグローブ卿によって19世紀前半に実験され、 その可能性が示された<sup>(1)</sup>(図1-1-1)。図の下部にある 4個のコップが燃料電池であり、上部の1つのコップで は水の電気分解が起こっている。下部のコップでは、水 素と酸素が充填された試験管をかぶせられた2本の金属 箔(白金)が、電解質(希硫酸)に浸されている。この 一対の金属箔の間には1V程度の電圧が生じる。これを 電池として使用した場合、試験管内のガスを消費し切れ ば電気を取り出すことはできなくなるが、試験管にガス を連続的に供給すれば連続的に発電することが可能とな り、発電機として機能することになる。このように燃料 を外部から供給することから燃料電池と呼ばれるように なった。燃料電池の発想はたいへん古いものであるが、 実用化は20世紀に入ってからである。同時期に発明さ れたエンジンの実用化は早かったが、燃料電池の実用化 にはかなり長い年月を要した。

燃料電池は使用する電解質により分類される。グロー プ卿は電解質に希硫酸を使用したが、現在はこれに代え 固体高分子を用いる固体高分子形(Polymer Electrolyte Fuel Cell: PEFCまたはProton Exchange Membrane Fuel Cell: PEMFC)や、りん酸形 (Phosphoric Acid Fuel Cell: PAFC)、溶融炭酸塩形(Molten Carbonate Fuel Cell: MCFC)、固体酸化物形(Solid Oxide Fuel Cell: SOFC)、が主要な燃料電池である。

燃料電池発電と、現在の火力発電所の主流であるガス タービン複合発電とを比較してみたい。図1-1-2には両 方式の機器構成を示す。ガスタービン発電方式ではガス タービンが発電効率を支配しているが、燃料電池発電で は燃料電池が支配する。

また、各種発電システムの発電出力と発電効率の関係 を図1-1-3に示す。



図1-1-1 グローブ卿の燃料電池



図1-1-2 発電方式による機器構成の比較



図1-1-3 各種発電システムの発電出力と発電効率

ガスタービン発電では、燃焼器で高温のガスを発生さ せ、ガスタービンを回して発電するが、燃料ガスが高温 なほど高い発電効率が得られる。したがって高効率化の ため1500 級までの高温化および大型化が進められ、 51%程度の発電効率が達成されている。しかし、1500 以上のさらなる高温化には新たな材料の開発やタービン 翼の冷却が必要であり、限界に近づきつつある。これに 対し、燃料電池発電では発電効率の主要機器である燃料 電池の理想発電効率は低温の場合ほど高く84%にも達す る。一方、電池内で起こる化学反応は高温の場合ほど活 発である。当所の解析によれば運転温度が500~ 1000 で最も高い効率が期待でき、ガスタービンと比 較して低い温度域で高い効率が得られる<sup>(2)</sup>。さらに、燃

料電池とタービンとを組み合わせた複合発電では、発電 出力が大きい程、発電効率の高い大型のタービンを利用 できるため発電効率が高くなる。

燃料電池は、アノード、カソード、電解質(マトリッ クス)の3つの主要な部材から構成され、これら一組を まとめてセルと呼ぶ。図1-1-1のグローブ卿の電池で説 明すると、2枚の白金箔がアノードとカソードに相当す る。アノードは、燃料が供給される電極であり、燃料極 あるいはマイナス極とも呼ばれる。一方、カソードは空 気や酸素が供給される電極であり、空気極、酸素極ある いはプラス極とも呼ばれる。

燃料電池では電極面積を広くするほど大きな電流が得 られるため、電気出力は電極面積に比例して増加する。 このため、開発されている燃料電池では1m<sup>2</sup>以上の大面 積なものがある。また、燃料電池において大電力を得る ためには、図1-1-4に示すように単セルを何枚も積層す る。このように、多数のセルが積層されたものを一般的 にスタックと呼ぶ。単セルと単セルの間にはセパレータ と呼ばれる部品が使われている。セパレータは、電気抵 抗の低い金属や炭素でできており、単セルを電気的に結 合する役割の他、燃料ガスと空気を分離する役割、燃料 ガスと空気をセルに供給する役割があり、両側にガス流 路が刻まれている。燃料電池は種類によって使用する材 料が異なるため、その厚みは様々であるが、一般的にア ノード、カソード、電解質の厚みは数十µm~1mm程 度と非常に薄く、セパレータまで含めても1セル当たり の厚みは1cm に満たない。

図1-1-5には、PEFCの発電原理を示す。水素(H<sub>2</sub>) は、アノードに電子(e<sup>-</sup>)を与え、2つの水素イオン (H<sup>+</sup>)(別名プロトン)となって電解質中をカソードに 向かって移動していく。この水素イオンはカソードで酸 素(O<sub>2</sub>)と反応し、電極から電子を受け取って水(H<sub>2</sub>O) となる。このようにアノードでは、中性の物質をイオン と電子に分離し、逆にカソードではイオンと電子から中 性の物質ができる。このため、アノードでは電子が過剰 な状態となり、カソードでは逆に電子が不足する状態に なる。つまり、これらの電極を外部的に電線で結ぶと自 然に電気が流れることになる。これが、発電の原理であ る。



図1-1-4 PEFCのスタック構造



# 1-2 様々な燃料電池

## 1-2-1 種類と一般的な特徴

燃料電池は、既に述べたようにPEFC、PAFC、 MCFC、SOFCに分類されるが、電解質の特性によって 動作温度や使用する電極材料が選定される。また、 MCFCとSOFCは他に比較して電池の動作温度が高く、 電池の排熱を利用した複合発電もできるため、特に高温 型燃料電池と呼ばれている。燃料電池の種類を表1-2-1 に、また、燃料電池の種類と燃料との関係を図1-2-1に 示す。200 以下の比較的低温で動作させるPEFCや PAFCでは、化学反応を活発に行わせるため、白金を触 媒として使用しているが、MCFCやSOFCは動作温度 が高いため高価な触媒が必要なく、ニッケル(Ni)が電

	固体高分子形 (PEFC)	りん酸形 (PAFC)	溶融炭酸塩形 (MCFC)	固体酸化物形 (SOFC)
動作温度	約80	約200	600 ~ 700	700 ~ 1000
電解質	プロトン導電 性高分子膜	りん酸水溶液	溶融炭酸塩 (Li/K、Li/Na)	固体酸化物 (YSZ)
反応イオン	H⁺	H⁺	CO32 -	0 <sub>2</sub> -
使用可能 源燃料	水素 天然ガス メタノール	天然ガス メタノール	天然ガス バイオマス、廃棄物 石炭	天然ガス バイオマス、廃棄物 石炭
適用分野	移動用電源 分散電源など	火力代替電源 分散電源	火力代替電源 分散電源	火力代替電源 分散電源
備考	COによる 触媒被毒	COによる 触媒被毒		

表1-2-1 燃料電池の種類と特徴

極として使用されている。Niは天然ガスの主成分であ るメタン(CH<sub>4</sub>)を水素(H<sub>2</sub>)と一酸化炭素(CO)に 改質する触媒能力があるため、MCFCやSOFCでは天 然ガスを直接燃料として使用することもできる。また、 SOFCおよびMCFCは一酸化炭素を多く含むバイオマ スガス化ガス、廃棄物ガス化ガス、石炭ガス化ガスなど を直接使用できるが、PAFCやPEFCでは、一酸化炭素 の濃度が高いそれらのガス化ガスは使用できない。以下 で各燃料電池を解説する。

- 1 PEFC:イオン伝導性を持った固体高分子(パーフ ルオロ系イオン交換膜)を電解質に使用するもので、 自動車用や家庭用として近年盛んに研究が行われてい る。運転温度は約80 である。発電効率は約60%と 高く、安価な水素製造が実現されれば、魅力的な電源 となるが、天然ガス等を燃料とする場合には、触媒で ある白金が10ppm以上の一酸化炭素濃度で触媒作用 を失うため、一酸化炭素の除去が不可欠である。この ため、天然ガスを燃料とする場合の目標発電効率は 36%程度となるが、排熱を利用した給湯ができ、電 気と熱をあわせた総合効率は80%近くとなり、家庭 用電源としての利用が期待される。発電出力としては、 家庭用として1kW級が、また、自動車用としては数 +kW級が想定されている。
- 2 PAFC:電解質として非常に濃いりん酸水溶液を使 用し、動作温度は200 前後である。PEFC同様に白



図1-2-1 燃料電池と使用可能な燃料の關係

金触媒を使用するが、PEFCよりも動作温度が高いた め、一酸化炭素(CO)の許容値は1%と高い。これ以 上の一酸化炭酸濃度を持つ燃料を使用する場合には、 一酸化炭素を二酸化炭素に転換する変成器を用いる必 要がある。PAFCで使用できる燃料は比較的水素成分 の多い天然ガス、メタノール、およびプロパンガス等 に限定される。発電効率は40%弱であるが、排熱を 利用した給湯ができ、電気と熱をあわせた総合効率は 80%近くとなり、分散型電源としての利用が期待さ れる。現在は、発電出力200kW級プラントの実証導 入が進められている。

- 3 MCFC:電解質には通常、混合炭酸塩(炭酸リチウムと炭酸ナトリウムあるいは炭酸カリウムの混合物) を溶融させたものを使用する。この混合炭酸塩は約 490 で解けて、高温なほど導電率が高くなるが、 700 以上になると、電池に使用している材料を激し く腐食させるため、MCFCの作動温度は650 前後で ある。アノードにはニッケル(Ni)が用いられる。また、ニッケルを触媒として、一酸化炭素(CO)は水 蒸気(H<sub>2</sub>O)と反応し、水素(H<sub>2</sub>)と炭酸ガス(CO<sub>2</sub>) になる(シフト反応)ので、一酸化炭素も直接燃料と して使用できる。従って、石炭ガス化ガス等も直接使 用することができる。発電出力としては分散型電源と しての250kW 級から火力代替用の数万 kW 級までが 想定され、開発が進められている。
- 4 SOFC:電解質には、セラミックスであるジルコニ アが通常使用され、その動作温度は700~1000 で ある。アノードにはニッケル(Ni)主体の物質が使用 されている。発電効率は45~60%で、分散型電源か ら火力代替用までの広い用途が期待されているが、近 年は発電出力1~50kW程度の小型のものが中心に開 発されている。

## 1-2-2 電池本体の発電効率

このような燃料電池本体の発電効率について考えてみ たい。ガスタービン発電では燃料は燃焼器で全て燃焼さ れるが、燃料電池では電池内で燃料がなくなると電圧が 急激に低下するため、供給した燃料を100%利用するこ とはできない。供給した燃料のうち発電に利用される燃 料の割合を燃料利用率と言い、同様に酸素利用率も定義 される。燃料利用率や酸素利用率は、燃料電池システム において重要なパラメータであり、発電効率を上げるた めには燃料利用率を高くする必要があるが、実際には 80~90%程度である。ここで、燃料利用率を*U<sub>f</sub>と*する と燃料電池の発電効率<sub>fc</sub>は、いずれのタイプの燃料電 池であっても電池の出力電圧*V*によって次式によって 定まる。

$$\varepsilon_{fc} = \frac{nFU_f V}{\Delta H} \tag{1-2-1}$$

ここで、 n は反応電子数であり、ファラデー定数 F (C/mol) との積である nFは1 モルの燃料が反応する ときに移動する電荷の総量である。 H は燃料1 モル を燃焼した場合の発熱量である。上式中の nF/ H は燃 料の種類のみによって決まり、たとえば燃料が水素の場 合  $fc = 0.675 U_f V (0$ 、HHV(高位発熱量、コラム 1参照)基準)となる。V は、無負荷時の電圧である開 路電圧 E から、反応によるガス濃度変化に伴う起電力の 低下分(ネルンストロス)、内部抵抗による電圧降下、 アノード反応に伴う電圧低下分、カソード反応に伴う電 圧低下分を差し引いた値である。(性能要因の詳細につ いては、3-1節参照)

4つの燃料電池性能の比較を図1-2-2に示す。燃料は 天然ガス、燃料利用率80%、運転圧力0.5MPaとしてい る。図中の発電効率は電池本体の効率であり、燃料の持 つ高位発熱量と発電電力との比である。いずれの燃料電 池も電流密度を上げると電圧は低下する。電流密度



図1-2-2 各種燃料電池性能の比較

300mA/cm<sup>2</sup>以下の、発電効率を重視する、つまり、電 圧の高さを重視する電流密度域では、MCFCの出力電 圧が他の燃料電池よりも高い。このように燃料電池本体 で最も高い電圧が得られることがMCFCの大きな魅力 の1つである。一方、発電効率ではなく、出力密度重視 の場合、出力密度は電圧と電流密度の積であり、例えば 電流密度200mA/cm<sup>2</sup>で電圧800mVの場合の出力密度は 0.16W/cm<sup>2</sup>であるのに対し、400mA/cm<sup>2</sup>で650mVの場 合の出力密度は0.26W/cm<sup>2</sup>となるため、300mA/cm<sup>2</sup>以 上の高い領域に設定する。この場合、MCFCはセル電 圧の電流密度依存性が大きいため、300mA/cm<sup>2</sup>以上の 電流密度域ではMCFCの出力電圧の優位性はほとんど なくなり、いずれの燃料電池の電圧もほぼ同じ値となる。

## 1-2-3 各種電池の性能要因分析

各燃料電池で性能差を生じている原因を探るため、電 流密度250mA/cm<sup>2</sup>における各性能要因を分析した結果 を図1-2-3に示す。図では、棒高さが開路電圧であり、 これから各性能要因による電圧ロスが差し引かれたもの が出力電圧となる。棒高さに占める割合が大きい性能要 因ほど性能への影響が大きい。本図から出力電圧は、低 温型である PEFC と PAFC で低く、高温型である MCFC と SOFC で高いがこれは以下の要因による。

開路電圧は、理論的に低温なほど高くなる。しかし、 発電によって生成する水の状態もこれに影響する。燃料 電池の運転温度が100 以上の場合には水は気体状態で 生成するが、PEFCでは動作温度が約80 と低いため 水は液体状態で生成し、このため開路電圧はPAFCよ りも低くなる。ネルンストロスに関しては、低温型であ るPEFCとPAFCではカソード側に水を生成するため 燃料の希釈がなく、25mV程度と小さいが、高温型であ るMCFCとSOFCではアノード側に水が生成し、燃料 を希釈するため、ネルンストロスは110mVと大きい。 また、カソード過電圧は、電池間で大きな差があり、低 温型のPEFC、PAFCでは非常に大きく、高温型の MCFC、SOFCでは小さい、これがMCFC、SOFCの出 力電圧が高い最大の要因である。MCFC はこのように 出力電圧が高いことに加え、高温ではあるが、加工がし 易く比較的安価な金属材料を使用できることが特長の1 つである。



図1-2-3 各種燃料電池の性能要因分析結果

# 1-3 MCFC の基本原理

## 1-3-1 電池材料と反応

炭酸塩(コラム2参照)を電解質として用いる MCFCスタックと電極構造を図1-3-1に示す。また、 MCFCの発電原理を図1-3-2に示す。

MCFCの動作温度は約650 と高温である。アノード はニッケル(Ni)を主体にクロム(Cr)、アルミニウム (AI)などの金属を少量添加した合金であり、カソード は酸化ニッケル(NiO)である。電解質には、炭酸リチ ウム(Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>)と炭酸ナトリウム(Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>)あるいは 炭酸カリウム(K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>)を混合した炭酸塩(我が国では、 3-2節で詳述するように、Li/Na系混合炭酸塩が主流) が使用され、これをセラミックスであるリチウムアルミ ネート(LiAIO<sub>2</sub>)の多孔質板に含浸したものが電池に組 み込まれている。アノードおよびカソードには、図1-3-1に示すように数µmの細孔が多数存在する。この細孔 の一部に電解質がしみ込み、ガスと電解質と電極が互い に接する場所が形成され、ここで図1-3-2に示した電池 反応が円滑に進行する。すなわち、カソードでは、酸素 (O<sub>2</sub>)と炭酸ガス(CO<sub>2</sub>)と電子から炭酸イオン(CO<sub>3</sub><sup>2+</sup>) が生成される。炭酸イオンは電解質中をカソードからア ノード方向に移動する。アノードでは、炭酸イオンと水 素(H<sub>2</sub>)が反応し、水(H<sub>2</sub>O)と炭酸ガスが生成され、



#### 図1-3-1 MCFCスタックと電極構造



電子が放出される。全反応は、水素と酸素からの水の生 成反応である。

PEFCでは、水素イオンがアノードからカソードに移動し、カソードで水蒸気を生成したが、MCFCでは炭酸イオンが、逆にカソードからアノードに移動しアノードで水蒸気を生成する。この水蒸気の生成する場所の差が、性能要因であるネルンストロスの差を生じさせる。

1-3-2 燃料改質とガスリサイクル

MCFCでは、アノードであるニッケル(Ni)が触媒 の役割を果たし、下記のシフト反応によって一酸化炭素 (CO)と水蒸気から水素と炭酸ガスが生じる。このため、 MCFCでは石炭ガス化ガスのような一酸化炭素の多い 燃料ガスも、この反応によって水素に変換されるため燃 料として利用できる。

$$CO + H_2O = H_2 + CO_2$$
 (1-3-1)

また、天然ガスの主成分であるメタンの改質をセル内 で行うことも可能である。メタン改質反応は

$$CH_4 + H_2O = 3H_2 + CO$$
 (1-3-2)

である。一般にメタンガスの改質反応とシフト反応によ

るメタンの水素への燃料転換率は、MCFCの動作温度 (約650)では必ずしも大きくないが、MCFC内部で は図1-3-2中のアノード反応によって水素が随時消費さ れ、また、この反応で熱と水蒸気が発生するため比較的 高い燃料転換率を得ることができる。これは内部改質型 と呼ばれ、小型プラントの電池構造として適する。

一方、メタン改質を電池外で行うものを外部改質型と 呼ぶ。外部改質型は内部改質型に比較して構造が簡単で あり、かつ軽量であるので、大形プラントの電池構造と して適する。(コラム3参照)

また、電池本体に関連した技術としてガスリサイクル 運転技術がある。MCFCを安定して運転するには、図 1-3-3に示す3つのガスリサイクルが必要となる。

- 1 アノードガスリサイクル:燃料排ガス中の未反応の 燃料を入口側に再び戻して、燃料利用率を上げるとと もに、炭素やメタンの発生を防止する。(コラム4参 照)
- 2 カソードガスリサイクル:カソード出口排ガスの一 部を再び入口に戻して、電池で発生する熱を効率よく 回収すると共に、電池の温度を制御する。
- 3 炭酸ガスリサイクル:アノード側で発生した炭酸ガ スをカソード側に戻し、カソード反応に必要な炭酸ガ スを賄うことによって炭酸ガスの外部供給設備を不要 にする。(コラム5参照)



図1-3-3 MCFCのガスサイクルシステム

# 1-4 発電システム基本構成

燃料電池は、燃料として天然ガスばかりでなく、世界 的に埋蔵量が豊富な石炭や、廃棄物やバイオマスをガス 化したガスを使用することができる。これらを燃料とす る場合、天然ガスや石炭を水素や一酸化炭素にする装置 が、燃料電池の前段に必要となる。天然ガスの改質器は 既に実用化され、石炭から水素や一酸化炭素を取り出す ガス化炉は、現在開発が進められている。燃料電池を電 気事業用として使用する場合には、高い発電効率が要求 されるため、燃料電池から排出される熱を利用してター ビン圧縮機(T/C)や蒸気タービン(S/T)を回し付属 する発電機によって複合発電を行う。図1-4-1には天然 ガスを燃料とした場合の燃料電池発電システムの機器構 成を示す。

PEFCでは天然ガスは改質器で水素と一酸化炭素に改 質され、一酸化炭素を除去した後、燃料電池に供給され る。PEFCの排熱は80 と低く、複合発電は行わず、 給湯等に利用する。PAFC、MCFCでは燃料電池の後段 に燃焼器(改質器)がある。燃料電池で消費した燃料ガ ス中の未燃分はここで燃焼され、T/Cや改質器の熱源 として利用される。MCFC、SOFCでは排熱が650 ~ 1000 と高温なため、さらに後段に排熱回収ボイラ (HRSG)を設置し、蒸気を発生させ、S/Tで発電する。 また、SOFCでは電池内で改質が行われるため、燃料電 池前段の改質器が不要となる。MCFCも電池内で改質 を行う内部改質型の場合はSOFCと同じ機器構成となる。 このようにMCFCなどの高温型燃料電池では、燃料供 給系の簡素化が図れることが魅力である。また、電池温 度制御のための冷却系についても水冷でないため複雑な 水処理系が不要となることも魅力である。なお、T/C には主として既存ガスタービン発電機の転用が考えられ ており、ガスタービン部を膨張タービンとして用いるこ とが想定され、G/Tと表記することも多い。

次に、燃料電池発電システムの発電効率を解説する。 燃料電池発電システムの発電効率(送電端、コラム1参 照)は次式で表すことができる。

 $net = fp \cdot fc \cdot pc + (1 - fp \cdot fc) \cdot bc - ap$ (1-4-1)

ここで、

- net :燃料電池発電システムの発電効率(送電端)
- fo : 燃料供給部の燃料変換効率

fc : 燃料電池本体部の発電効率

*pc* : インバータの直交変換効率(1)



図1-4-1 燃料電池システムの機器構成

- *bc* : ボトミングサイクルの発電効率(小型システムには付かない)
- ap: : カソードブロワやポンプ等の補機動力

天然ガスは改質器で水素等に燃料変換効率: fp で転換 され、燃料電池で直流電力に発電効率: fc で変換され、 インバータで交流電力に直交変換効率: pc で変換される。 また、ここで電力に変換されなかったエネルギー: 1 - fp・fc は、T/Cの発電効率 bc で交流電力に変換 される。インバータとT/Cの交流電力の和から、システ ム内でのガス循環やポンプ等の動力として消費される補 機動力: ap を差し引いた値が、発電効率となる。図1-4-2 には MCFC 発電システムの機器構成と発電効率との関 係を示した。この概算では、発電効率は52%となる。

なお、本構成では燃料に天然ガスを想定しており、カ ソード側に電池温度制御のためのカソードガスリサイク ルが設置されている。また、アソードで発生する炭酸ガ スを多く含むアノード排ガスは改質器の燃焼部に入り、 共存する水素や一酸化炭素が燃焼(酸化)されて、水や 炭酸ガスに変わった後に、空気と混合されてカソードに 供給され、炭酸ガスリサイクルが完成される。天然ガス 燃料の場合には、設定できる燃料利用率に上限があり、 また、水素元素を多く含み、炭素析出も比較的起こりに くいと考えられることから、本構成ではアノードガスリ サイクルは付設していない。



図1-4-2 MCFC発電システムの効率

## コラム1: HHV? LHV? DC 端? 送電端?(熱効率の定義)

発電設備の熱効率は、その分母となる燃料の発 熱量をどのように定義するか、あるいは、分子で ある発電電力をどのように定義するかにより数値 が変わってくる。燃料電池発電設備ではこれらの 表記が国内外で混在して用いられていることが多 く注意しなければならない。

分母となる発熱量の表記には、LHV ベース(低 位発熱量基準)とHHV ベース(高位発熱量基準) がある。両者の差は、燃料が完全燃焼した場合に 発生する水の取り扱いにより生じる。例えば、天 然ガスの主成分である CH₄ 1 mol が完全燃焼した場 合、生成物として 2 mol の水が発生する。

$$CH_4 + 2O_2 = CO_2 + 2H_2O_2$$

この反応による生成物である CO<sub>2</sub>とH<sub>2</sub>O は気体 である。そのうちH<sub>2</sub>O は、液体から気体になると き大きな吸熱を伴う(汗が蒸発する時の吸熱により 体温の上昇を防ぐことと同じである)。逆に、液体 になるときに大きな発熱を伴う。

即ち、燃料は燃焼して気体の水(水蒸気)を生成 するが、その気体の水が液体になる時には、熱を発 生する(10.5kcal/molH<sub>2</sub>O)。この発熱を燃料の発熱 量に含めた場合、即ち、燃焼したガス中の水分が液 体となった場合までの燃焼熱を分母としたのが HHVベースで定義された熱効率であり、水分が気 体として排出された時までの発熱量を分母と定義す るのがLHVベースの熱効率である。一般に発電装 置では、水蒸気が液体の水になる時の発熱量を有効 に利用することはできない。

HHV ベースとLHV ベースの熱効率の 値の差は、燃料が完全燃焼した場合の水 分量すなわち燃料中に含まれるH元素の 量に左右され、水素、天然ガス、石炭ガ ス等の燃料種類により異なる。例えば、 CH<sub>4</sub>を燃料とし、熱効率が送電端で50% HHVとなった場合、LHVベースで標記す ると、55.5%LHVに相当する。水素を燃 料とした場合、HHVベースで50%HHV であれば、LHVベースでは59%LHVで ある。なお、COが燃焼し、CO<sub>2</sub>を生成す る場合は、燃焼反応により水が発生しな いため、LHVとHHVの値は同一となる。

一方、熱効率の定義の際、分子となる 電気出力にも様々な定義がある。通常の 発電装置であれば、交流で電力を利用す るのであるから、交流端出力への変換効率のみが意 味を持ち、燃料電池やガスタービンの出力から、補 機動力や所内動力を差し引いた数値が送電端熱効率 と一般に定義されている。

火力発電所での熱効率の定義は、我が国では HHVベース、欧米ではLHVベースの送電端効率と することが多い。これに対して、コージェネレーシ ョンプラントは我が国においてもLHV表記が多く 燃料電池においては、適用分野によって表記がまち まちとなっているのが現状である。LHVベースで 定義した場合、熱効率の数値が大きくなるので発電 性能が過大評価されてしまう可能性が生じる。

また燃料電池発電では、直流で発電された電力 をインバータにより交流に変換して利用すること が多いため、その電気出力はDC端やAC端で定義 される。DC端は燃料電池で発電された直流電力で あり、電気的にインバータの上流で定義される。 AC端は直流の電力を交流に変換した後の出力であ り、インバータの下流で定義される。通常のイン バータ効率は90~95%程度であるから、DC端と AC端出力を熱効率で表した場合、3~5%程度の 差が発生する。また、分散型電源として熱電併給 を考えた場合には、熱効率の分子となる出力に電 気出力と熱出力が含まれる。

以上のように、熱効率を論じるためには、電気 出力がACなのかDCなのか、燃料の発熱量はLHV ベースなのかHHVベースなのか、補機動力や所内 率をどこまで差し引いているのかを明確に定義す ることが重要である。



## コラム2:炭酸塩とは?

MCFCに使用されている炭酸塩は、室温では白 い粉状であるが、約500 以上の高温では融けて無 色透明な液体状態となり、これを溶融炭酸塩と呼ぶ。 炭酸塩は、日常あまり聞き慣れない物質であるが、 実は粉石けんや洗剤の成分や入浴剤の配合成分とし て広く用いられている他、食品添加物として、中華 麺やこんにゃくの製造にも用いられている身近な物 質である。炭酸塩は、リチウム(Li<sup>+</sup>)、カリウム (K<sup>+</sup>)やナトリウム(Na<sup>+</sup>)のプラスのイオン2個 と炭酸イオン(CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>)とで構成され、プラスイオ ンの種類や組成によって、**表**に示すように融点等の 物性が変化する。溶融炭酸塩は高温で安定な物質で あり、かつ、導電率も他の燃料電池の電解質の導電 率よりも1~2桁高く、優れた物性を持つ。

MCFCの電解質としてはLi/K系混合炭酸塩が主 流であったが、日本ではLi/Na系混合炭酸塩が近年、 主流となっている。これは、表からわかるように、 Li/Na系混合炭酸塩はLi/K系混合炭酸塩よりも導 電率が高く、また、Ni溶解度が低いためである。 この理由については3-2節において詳しく解説して いるが、MCFCの性能面、寿命面での問題解決の

炭酸塩組成 (混合塩)	融点 ( )	導電率 (1/ cm)	Ni溶解度 (×10 <sup>-6</sup> mol)
Li/K (62/38)	488	1.05	41.9
Li/Na ( 52/48 )	496	2.18	22
Li/Na/K ( 43.5/31.5/25 )	397	1.48	60

表 炭酸塩の物性比較

ため、今後も炭酸塩組成の最適化が行われていくも のと考えられる。

このような最適化を促進するため、当所では3-1-2項で解説した性能表示式をさらに発展させ、炭酸 塩の物性値のみからセル電圧を推算する手法を開発 している<sup>(1)</sup>。本手法では、実験に先立って、セルに 多様な炭酸塩組成を適用した場合のセル電圧を推算 できる。図には、その一例を示す。現状のMCFC システムのようにスタック内温度が580~680 の 場合にはLi/Na系混合炭酸塩を電解質として用いる ことが最適であるが、セル入口温度を下げるような システムが可能となれば、Li/Na/K系混合炭酸塩も 有力な電解質候補となることが予想される。





# これまでのMCFC開発(その成果と課題)

音

第

MCFCの研究は1920年代にドイツで始まり、オランダやアメリカでの基礎研究を経 て、1980年頃から我が国とアメリカで国家プロジェクトに組み込まれて開発が進んで きた。当研究所では1981年に研究を開始して、同年にスタートしたムーンライト計画 に参画し、スケールアップに合わせながら性能評価と技術開発を実施してきた。同計 画では1999年に1,000kWのプラントが発電効率45%の目標を達成し、現在さらに高性 能化を目指した開発に引き継がれている。 第2章 これまでの MCFC 開発 (その成果と課題) 目次

横須賀研究所 エネルギー化学部長 渡辺 夫 横須賀研究所 エネルギー化学部 上席研究員 伊崎 慶之 溶融炭酸塩型燃料電池発電システム技術研究組合 技術部 課長 安井 肇一 横須賀研究所 エネルギー化学部 上席研究員 良啓 麦倉 2 - 1 2 - 2 2 - 3 高効率発電実用化への道筋 28 2 - 4 コラム3:外部改質と内部改質 35



渡辺 夫(1981年入所) 入所以来、燃料電池の技術開発に一貫して 従事。特にMCFCのセル・スタック運転・ 評価手法の開発、ガスサイクル運転手法の開 発、システム性能解析・評価などを行うと共 に国の開発計画にも携わってきた。また、 SOFCセル・スタックの開発も推進している。 高効率な高温型燃料電池の実現に是非寄与し たい。

(2-1、2-3、2-5執筆)



安井 肇一(1984年中部電力(株)入社、 2003年より、MCFC発電システム技術研究 組合(MCFC研究組合)に出向)

出向して以来、国プロであるMCFC発電 システム研究開発の計画、管理および組合全 体の研究のとりまとめ業務に従事。現在は、 2004年度から実施する高性能モジュールス タック仕様の検討に取り組んでいる。

(2-4執筆)

伊崎 慶之(1984年入所)

入所以来、MCFCの研究開発に従事。主 に、実面積スタック化技術の開発および運 転・評価法の研究を進めてきた。さらに、 1,000kW 級発電プラントの運転研究にも直接 携わってきた。今後も、社会に役立つ MCFC 発電プラントの実現を目指して高効 率・低コスト化ならびに信頼性向上に取り組 んで行きたい。

(2-2執筆)

麦倉 良啓(8ページに記載) (コラム3執筆)

# <sup>2-1</sup> 内外における MCFC 開発の経緯

## 2-1-1 MCFC 開発の黎明

MCFCの開発は、1921年にドイツのBaurらが燃料電 池用電解質に溶融炭酸塩を用い約1000 で実験したこ とに始まると言われている。その後しばらく時間をおい て1946年にソ連のDavtyanにより電解質を保持するマ トリクスの概念が導入されたり、1958年にオランダの Broersらにより多孔質Ni電極が採用されたりして、オ ランダ、米国などで、その電解質や電極の組み合わせに 関して、盛んに研究が進められた。その間、マトリクス にはMgOなど、電極にはFe、Ni、Co、Ag、Znなどが 試みられ、現在の原型ができあがったのは1970年頃で ある<sup>(1)</sup>。

これらの MCFC 基礎研究成果は、1970 年代後半から 米国においてその開発が展開される事になった。国家プ ロジェクトとしては、ERDA(U.S.Energy Research and Development Administration 連邦エネルギー研究 開発局)によって1976 年にはスタートし、1978 年に DOE(Department of Energy エネルギー省)に引き継 がれている。我が国では、1981 年から国のムーンライ ト計画にPAFC、SOFC とともに採りあげられ、開発が スタートしている。

#### 2-1-2 国外での開発<sup>(2)</sup>

#### (1) 米国における開発現状

米国では、DOEがMCFCの開発を推進してきた。開 発初期の1970年代においては、石炭を利用する集中型 発電プラントが最終目標として構想されていた。1990 年代からは数MW程度までの中小容量の分散電源とし ての開発に重点が置かれ、コージェネレーション用プラ ントとしての開発が指向された。そして、最近では Vision21計画におけるクリーンコールテクノロジーの一 環として、燃料電池発電の適用が見直され始めており、 再び集中型としての適用も推進されていく気運が高まり つつある。

技術開発はDOEのプログラムのもと、1970年代には

IGT (Institute of Gas Technology、現GTI、Gas Technology Institute)、UT (United Technologies)社、 GE (General Electric)社などが開発を進め、基本技術 を確立してきた。その後、1980年代からERC (Energy Research社、現在FCE (FuelCell Energy)社)や MCP (M-C Power)社などのベンチャー企業により開 発が引き継がれた。

現在、DOEのMCFC開発は、NETL(National Energy Technology Laboratory)を通して、FCE社の 常圧内部改質方式に絞り込まれている(内部改質につい ては、コラム3参照)。同社ではDFC (Direct FuelCell の意)という名称で、3段階(250kW、1MW、2MW) の容量を持つプラントの開発を進めている。このうち、 250kW級システムは、ドイツMTU社(Moter & Turbine Union、Daimler Chrysler 社の子会社)との共 同開発により、既に米国、日本などで10台以上のフィ ールドテストが行われており、わが国では、麒麟麦酒(株) に続いて、福岡市下水道局、日本金属工業(株)、石油資 源開発(株)、セイコーエプソン(株)などに導入される計 画が発表されている。また、国外では1MW機、2MW 機の実証計画も発表されており、下水処理場での消化ガ スを利用するもの(1MW)や、クリーンコールテクノ ロジーの一環として石炭ガス利用向けに開発するもの (2MW)などがある。また、石炭炭坑からの発生メタン を利用してその排出量を抑え地球温暖化防止を目指した もの(250kW)などもあり、種々の形態が計画されて いる。

同社ではまた、Vision21計画において、ガスタービン との組み合わせによる高効率プラントの実証試験も進め ており、250kW システムをCapston社のマイクロガス タービン(30kW級)との組み合わせ試験(DFC/T試 験)を実施している。本システムは燃料電池部分が常圧 で作動し、タービン(燃焼器のないエキスパンダ)はそ のトッピングサイクルとして構成されている。

#### (2) 欧州における開発現状

欧州では分散型の熱併給用電源として位置づけた開発 が進められている。 ドイツではMTU社が開発を進めている。同社ではプ ラント周辺機器の低コスト化の観点から、独自のHot Module構造を考案し、それにFCE社製の250kW常圧 内部改質型スタックを組み込んで250kW常圧内部改質 型システムを構成した(図2-1-1)。Hot Module構造と は、横置きの円筒型の収納容器内部に満たされたカソー ドガスを循環してスタック温度を制御する構造であり、 配管が少なく、コンパクトとなる。スタックは収納容器 内に横倒しに配置されており、直交流方式(燃料ガスと 酸化剤ガスがセル面に沿って直交するように流れる方 式)をとっている。同社から出荷されたユニットは、ド イツ、スペインで数台がコージェネレーション用として 稼働している。

イタリアは、スペインと共に、MOLCARE計画にお いて、1999年に100kW級スタック(加圧:0.35MPa、 外部改質、直交流方式、0.75m<sup>2</sup>×150セルスタック)お よびCU(コンパクトユニット;スタックおよび改質器 を含む高温周辺機器を同一圧力容器内に納める)プラン トを開発した。その成果をもとに、Ansaldo Fuel Cells 社が中心となり、同一容器に2基のスタックとその下部 に改質器と触媒燃焼器を一体化して設置したTwin Stackコンセプトによる500kWモジュール(Series500) の開発を進めている。さらに、高効率・高信頼性・低コ ストスタックの開発(Li/Na電解質)およびバイオマス ガス化へのMCFCの適用に関する実証試験をEU支援 のもと計画している。



図2-1-1 Hot Module構造による250kWシステム (同社パンフレットより)

#### (3) アジアにおける開発現状

韓国においては、KEPRI(韓国電力公社電力研究院) が中心となり、KIST(韓国科学技術研究院)での基礎 研究をもとに、加圧外部改質型プラントの開発計画を進 めており、これまでに25kWスタック(内部マニホール ド)の加圧での発電試験とその高性能・長寿命化実証試 験を実施している。これらは、2005年の100kW級、 2008年の250kW級外部改質型システムへとつなげる計 画である。

中国では、政府の第九次五ヶ年計画(1996年~2000 年)において、大連化学物理研究所、中国科学院が研究 を進め、大連化学物理研究所において1999年に、1kW 級スタックの開発が行われた。また、上海交通大学では、 燃料電池研究所を設立して、上海市の支援によってほぼ 同時期に1kW級のスタックを開発している。現在、第 十次五ヶ年計画において、当面50kW級を目指した開発 が進めている。

これら国外の開発動向を図2-1-2に示した(3)。

#### 2-1-3 我が国での開発

我が国のMCFC開発は、世界的にも早い時期から開 始され、脱石油のための技術開発に向けて設定された通 産省(当時)によるムーンライト計画において1981年 から推進されてきた。この開発は、電気事業用電源を中 心に、石炭の利用も念頭に置きながら、当面天然ガスの 利用を考慮したものであり、プロジェクトはこれまでに 3期に亘って新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO)によって進められてきている。

第 I 期 (1981 ~ 1986 年度) では、電池本体を中心と して、10kW 級スタックが(株)日立製作所、(株)東芝に よって開発された。

さらに第 II 期(1987 ~ 1999 年度)には、1987 年度に 設立された溶融炭酸塩型燃料電池発電システム技術研究 組合(MCFC研究組合)がNEDOからの主たる受託者 となり、前期と後期に、それぞれスタック本体と発電シ ステムの開発を進めてきた。スタック本体は、外部改質 型については、直交流型(正方形型の1セルを4枚の電 極を組合わせて構成、(株)日立製作所)と並行流型(燃 料ガスと酸化剤ガスがセル面に沿って同一方法に流れる 方式、長方形の1枚のセルのみで構成、石川島播磨重工

2005	利用実証	<u>_</u>		「開発	ブラント
2004	<b>オマス・石</b> 志	遺構 し 「	組合せ)	パートコーン	۲۲ 250km
2003	الأحر 250kW	オット 	250kW スタックと	によるコン	50kW7
2002	— 惑 —	通MTU社の	  初期商用機    米FCE社の	vinスタック	
2001	1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1	<u> </u>		ŕ	
2000		•	(数台)	500kW	666
1999	1MW, 2M	デム検討	・ドテスト繊	00kWJ3>	(W.X.9 ~ 0 1kW.7
1998		「 し」 「 し」 「 し」 「 し」 「 し」 「 し」 「 し」 「 し」	280kW	→>( 0.7m <sup>2</sup> ) 1(	224
1997	コストダ スタッグ(( PDIプロト	エゴ250kW ▲ 発電 ウン、長寿	ドイツ) ▲ 発電	5kWスタッ 1ジェクト	5kWスタッ
1996	<ul> <li>ログラム</li> <li>役討、改良、</li> <li>375kW</li> <li>ラント</li> <li>▲ 発電</li> </ul>		プラント	スタック 1 LCAREプE	スタック (0.1m <sup>2</sup> )
1995	PDIプ (製品) (0.6m <sup>2</sup> ) ララ2MWプ		280kW	4kW MO	2K N
1994	大容量化 	375kW.X.2 51/250kW			
1993	イッタン 100~125	イックシク した 10kWスら	EF X		
1992	技術開発	20k1			
1991	DOE計画 70kM				
開	アメリカ DOE計画 FCE(IBERC)	M-C Power オランダ ECN BCN他	ドイツ・デンマーク MTU(ARGE計画)	イタリア・スペイン ANSALDO・ IBERDROLA街	韓国 KEPRI・KIST他 中国 上海交通大学

図2-1-2 国外のMCFC開発動向

業(株)(IHI))が開発され、これらの技術は前期最終年度 の1993年に100kW級スタックとして検証された。また 同時に1,000kWプラントに向けた改質器、プロワ、排 熱回収熱交換器などのBOP機器(Balance of Plant、電 池以外の構成機器)の開発も行われた。これらの成果は 後期の1,000kWプラントに適用された<sup>(4)</sup>。本プラント は中部電力(株)の川越火力発電所構内のMCFC研究組 合川越発電試験所に設置され、LNGを燃料として、圧 力0.5MPaで45%(HHV基準)以上の目標発電効率を達 成した(2-2節参照)。

一方、内部改質型についても前期での30kWスタック

(三菱電機(株)が開発)検証を経て、後期には1m<sup>2</sup>級セ ルにより200kWの常圧内部改質スタックが開発された。

これらの成果は2000年度から開始された第III期計画 (2000~2004年度)(2-4節参照)に引き継がれている。 当研究所では、第I期から第III期全てに亘って、国の開 発計画に携わり、当所独自の技術を背景に100kW級ス タックまでの電池性能評価やトータルシステムの研究な どを実施してきている。我が国の第I期から第III期まで の開発計画全体を他の燃料電池の展開も含めて図2-1-3 に示した。



図2-1-3 我が国の燃料電池開発計画

# <sup>2-2</sup> 1,000kW **発電プラントの成果と** 課題

2-2-1 1,000kW 発電プラントの概要<sup>(1)</sup>

我が国のMCFC開発計画第II期では、電気事業用の 高効率発電システムとして、1999年に、1,000kW級発 電システムが開発・実証された。本システムは、NEDO の計画として、当研究所や電力会社などで構成する MCFC研究組合が主体となって開発したものである。 システムは250kW級スタック4台(石川島播磨重工業 (株)(IHI)と(株)日立製作所がそれぞれ2台ずつ製作) と、それに燃料を供給する天然ガス用の改質器、排出ガ スから動力回収を行うタービン圧縮機から構成され、中 部電力(株)川越火力発電所構内に設置された(図2-2-1)。 本システムは高温型燃料電池とガスタービンとを組み合 わせた世界で初めての複合発電システムと位置づけるこ とができる。システムの開発目標は、発電端効率45% (HHV基準)以上、送電端効率40%(HHV基準)以上、 運転時間5,000時間以上、電圧低下率1%/1,000時間程度 と設定された。



図2-2-1 1,000kWプラント

2-2-2 運転成果(1)

プラントは、1995年の基礎工事、1996年の建屋建設 に始まり、1997年に電池本体を除く機器類の据え付け、 調整を経て、1998年に250kWスタック4台を据え付け た。電池据え付け前の調整試験(Process and Control (PAC)試験)には約9ヶ月の期間をかけて実施した。

図2-2-2に、プラントの電力系統への初併入から運転 研究終了までの発電実績と経過を示す。運転研究は、 1999年8月4日の電力系統への初併入後、先に述べた プラント全体の最終調整を各出力レベルで行った。なお、 この期間、500kW出力中に落雷による緊急停止を経験 したが、プラントは、無負荷状態に安全に移行し、各機 器への影響も認められなかった。その後、夏季のプラン ト最大出力である900kWの発電出力に9月6日に到達 し、プラント点検のために、計画停止を実施した。計画 停止期間中、各スタックは、電解質溶融状態で保持した が、途中、一部スタック容器内での地絡(スタックと対 地間の短絡)が発生し、原因究明および対策のため、 500kW分のスタックについて、室温までの冷却を余儀 なくされ、冷却後、容器解放による点検および対策を実 施した。

スタック容器内の地絡原因の究明および対策を実施し た後、スタックの再昇温終了を待って、プラントの起動 ならびに発電試験を再開した。その結果、11月5日に プラントの定格交流出力1,000kWを達成した。その後 は、2度の計画停止を挟み、計3回の定格出力での連続 発電試験を実施した。なお、1999年の年末においては、 Y2K(2000年問題)の影響を懸念し、プラント最低負 荷300kWでの連続発電状態で対応した。また、2000年 1月28日に定格発電からの負荷遮断試験を通産省資源・ エネルギー庁審査官立ち会いのもとに実施し、安全にプ



図2-2-2 1,000kWプラントの出力トレンド

ラントが停止することを実証し、国内では初めて、電気 事業法第49条第2項の規程に基づく電気工作物として、 1,000kW級加圧MCFC発電プラントが技術的に認知さ れた。

この間の運転実績としては、スタックの累積運転時 間:4,211時間(500kW分のスタックについては、4,916 時間)、累積発電時間:2,669時間、総発電電力量: 203,120kWh、プラント起動回数(冷態):4回であっ た。また、発電時間の内訳を見ると、定格出力での累積 発電時間が1,264時間と全体の発電時間の約50%近くと なり、運転試験初期の外気温の影響による出力制限期間 を含めた750kW出力以上の累積発電時間は、全体の約 75%を占める発電実績となった。さらに、定格での最 長連続発電時間は、528時間であった。主な成果を、開 発目標と併せて表2-2-1に示す。

以上の運転実績から、途中、トラブル等による計画の 遅れはあったものの、天然ガスを用いた MCFC 発電シ ステムが、発電プラントして技術的に実現可能であるこ とを国内初の 1,000kW 級加圧発電プラントにおいて実 証した。

項目	開発目標	評価
出力	1,000kW級(AC)	定格1,000kWを達成 累積発電時間( 1,264時間 )
運転時間	5,000時間以上	ほぼ達成(4,916時間)
発電端効率	45%(HHV基準) 以上	45.2% ( 通常運転モードで の実績 )
送電端効率	40%(HHV基準) 以上(組合自主目 標)	33.3%(放熱ロス、メカロ ス、ヒータ動力の増加が主 要因)
環 境	規制値以下	NOx:10ppm等規制値クリア
スタック劣化率	1 %/1,000時間 以下	A系:0.7%/1,000時間 B系:0.5%/1,000時間

表2-2-1 1,000kWプラントの開発目標と成果

## 2-2-3 残された課題

今回の1,000kW級MCFC発電プラントの運転研究か ら、大型スタックの発電性能面については大きな問題も なく、プラント内での運転においても十分な性能を発揮 できる技術レベルに到達していることが実証できた。し かし、大型スタックの信頼性ならびにプラント全体での 効率・運用性等については、今回の運転研究で得られた 課題を早急に解決する必要があり、次期プラントにおい ては、今回の経験を生かした総合的な視野からの設計・ 施工を行い、実用化レベルの加圧MCFC発電プラント として実証することが期待された。

運転研究から、明らかとなったプラント化への課題は 以下の通りである。

- プラント放熱量低減のため、高温のガスが往き来す る改質器と電池スタック間の放熱ロスを低減できるシ ステム構成およびコンパクト化の検討
- 2 プラント内で発生するダストの処理のため、スタッ ク上流機器および配管の適正化による発生ダストの低 減ならびにスタックに及ぼすダストの影響調査、フィ ルタ等の必要性、構造ならびにメンテナンス性等の検 討
- 3 スタックからの炭酸塩飛散に対して、飛散量の推定 に加え、飛散炭酸塩の析出を考慮した機器選択ならび にシステムの検討
- 4 大型スタックにおける信頼性向上のため、高温での ガスシールを兼ね備え、直流絶縁設計を十分配慮した スタックの設計ならびに構成の検討
- 5 大型化に伴う熱膨張等も考慮した圧力容器内構造の 設計ならびに施工管理

# <sup>2-3</sup> 高効率発電実用化への道筋

## 2-3-1 実用化への方向性

1,000kW プラントの結果を受け、MCFC研究組合に おいて、実用化へ展開するための方策が協議された。 1,000kWシステムは将来の火力代替発電システムとし て開発され、プラントとしての成立性を明らかにし、設 定された開発目標も概ね達成した。しかしそれに並行し て、外部状況の大きな変化があった。すなわちコンバイ ンドサイクル技術の進展である。通称 ACC (Advanced Combined Cycle)と呼ばれるガスタービン複合発電サ イクルは、MCFC技術の進展に比肩するようにガスタ ービン入口温度の向上が図られ、その発電効率は、1996 年時点で1300 級ガスタービンにより約49%が達成さ れている。さらに、1999年時点では1500 級ガスター ビンにより、その発電効率は約51%まで向上している。

これに対して、1,000kWプラントでは、使用材料 (Li/K系電解質)に起因する電池性能の限界から、大容 量化による効率向上はあまり見込めないものと推測され た。すなわち、ACC発電技術の進展に照らし合わせる と、火力代替用としての将来の展望が見えにくい状況と 言わざるを得なかった。

もう一点の課題は、コストである。1,000kWプラント では、スタック本体を構成するセパレータにコルゲート 板を用いており、部品点数が多く、その重量、コストも 大きな比率を占めていた。さらに、プラント容量に対応 した改質器一台に複数のスタックが接続された構成であ ったため、容量の変更に伴う改質器やスタックの設計変 更が避けられず、火力代替の大型機への適用に際してよ り効果的な方策が模索された。

# 2-3-2 高性能化・低コスト化のためのキー テクノロジー

これらの状況を受け、実用化への展開のために協議さ れた方策の要点は、さらなる効率向上を達成するための 電池技術や運転条件の採用、将来的なコスト低減を見据 えたシステム構成の選定である。

そのためのキーテクノロジーとして選択されたのが、 Li/Na系の新規電解質の適用、プレスセパレータの採用、 発電部分のモジュール化である。

詳細は3-3節に示したが、Li/Na系電解質は、内部抵 抗を低減するばかりでなく、カソード(NiO)の溶解度 低減によってニッケル短絡を抑制し寿命延伸を図ること のできる電解質として、当研究所が以前からその適用性 評価に取り組んできたものである。プレスセパレータに ついても、構成部品点数を削減し、軽量化、低コスト化、 さらには腐食面積低減に伴う寿命延伸が図れるセパレー タとして、当研究所が石川島播磨重工業(株)や中部電力 (株)と共同で開発を進めてきたものである。発電部分の モジュール化に関しては、比較的小容量の容器の中に、 MCFCスタック本体とその容量に対応する改質器を組 み込むものであり、要求されるプラント容量に合わせて モジュール数を増減させることで対応でき、モジュール の規格化と量産による低コスト化も期待できる。また、 ガスタービンとの組み合わせによる複合発電を構成し高 効率化を図ることとし、適合する既存ガスタービンの作 動圧力に合致した圧力で MCFC を運転することを目指 した。

これらの技術提案は国の評価会議で高い評価を得、開 発計画は次の第111期へと展開する事となった。<sup>(1)</sup>

# 2-4 現在の国の開発プロジェクト

## 2-4-1 第Ⅲ期 MCFC プロジェクトの概要

MCFC研究組合は1988年2月に設立され、経済産業 省の下、NEDOからのMCFC発電システムに関する受 託研究を同年から推進している。これまでの開発成果を 基に、2000年度からはMCFC発電システムの早期実用 化を目指して第111期計画(5ヵ年)を開始している。 2004年現在の構成員は(財)電力中央研究所、北海道電力 (株)、東北電力(株)、東京電力(株)、中部電力(株)、北陸電 カ(株)、関西電力(株)、中国電力(株)、四国電力(株)、九州 電力(株)、電源開発(株)、石川島播磨重工業(株)、(財)日 本ファインセラミックスセンターである。

第Ⅲ期研究開発スケジュールを図2-4-1に示す。本計 画では高性能が期待できる新しい電解質(Li/Na系)を 適用した10kW級ショートスタックの長寿命試験(1万 時間)、1.2MPaの高圧条件下でのショートスタック試験 をまず実施し、その結果をふまえて、300kW級の加圧 小型発電システムの開発とそれに続く高性能モジュール の開発が計画されている。以下に第Ⅲ期プロジェクトの



図2-4-1 第111期研究開発スケジュール

これまでの主要成果について紹介する。(1)~(3)

2-4-2 要素技術開発

#### (1) 高積層スタック技術開発

加圧下(0.5~1.2MPa程度)の運転で、4万時間程度 の寿命を持つ1m<sup>2</sup>級セルを250段積層した大型スタック の設計・製造技術を確立することを目的としている。

2002年に加圧小型発電システムで使用する 250 段積層 スタックを製作した。製作した 250 段スタック外観を図 2-4-2 に示す。



図2-4-2 250段スタック外観

また、将来の MCFC の高性能、高信頼性および低コ ストを目的とした次世代電池材料の開発と基礎データの 蓄積も行った。特に、1.2MPa の高圧下の運転では、カ ソード材料であるニッケルの電解質中への溶出が顕著に なるため、これを抑制する MgFeO 被覆改良カソードの 製造技術を(財)ファインセラミックスセンターが開発し た。

#### (2) ショートスタックによる信頼性評価

本研究の目標は、単セルやショートスタック(実用規 模面積のセルを数10段程度積層したスタック)の発電 試験により性能を確認し、また、試験後に電池を解体分 析して劣化状況やその要因を検討し、目標としている4 万時間運転の可能性を見通すことにある。ショートスタ ックを用いた1.2MPaの高圧運転試験を行い、スタック およびシステムの高圧運転への適合性も評価している。

1 加圧ショートスタック試験

2001年4月から平成2002年6月に、(財)電力中央研究 所において、実用規模(有効電極面積1m<sup>2</sup>級)のセルを 用いた10kW級ショートスタックによる1万時間発電試 験(運転圧力0.5MPa)を行った。この間に試験装置の 点検などで数回の発電停止があったが、スタック平均出 力約11.5kWで運転を継続し、その電圧低下率は1,000 時間当たり約0.3%であった。加圧運転条件下でのスタ ック性能は、ほぼ実用可能なレベルに到達したことを実 証した。図2-4-3にスタック電圧の経時変化を示す。



図2-4-3 加圧ショートスタックによる1万時間寿命試験結果

発電試験を終了後、石川島播磨重工業(株)相生工場 にてスタックの解体分析評価が行われ、外観観察では異 常な腐食や炭酸塩の流れ出しは認められなかった。また、 カソード電極から炭酸塩中へのNi析出量、電解質損失 量およびセパレータ表面の腐食量など、スタック寿命を 決定する要因の調査結果から0.5MPa程度の運転圧力条 件下では4万時間の運転が可能との見通しを得た。

2 高圧ショートスタック試験

中部電力(株)川越火力発電所構内にある MCFC研究 組合川越発電試験所(以下川越試験所)に設置した高圧 試験装置で、1m<sup>2</sup>級セルを10段積層した10kW級スタッ クを対象に送電端発電効率55%以上(LHV基準)が期 待できる中規模 MCFC発電設備の運転ガス条件を模擬 した運転圧力1.2MPaの試験を、2002年2月から2003年 1月まで(累積発電時間は約3,100時間)行い、初期平 均セル電圧715mV(電流密度200mA/cm<sup>2</sup>、出力は約 15kW)を確認した。世界で初めて1m<sup>2</sup>級スタックによ る高圧運転に成功するとともに開発目標を達成した。これにより高性能モジュールの開発目標を達成する見通しを得た。図2-4-4にプラント模擬条件での発電試験結果を示す。

#### (3) 加圧小型発電システムの開発

1 加圧小型発電システムの目的

MCFCの早期市場導入を図るため、300kW級の小規模 電源を製作し運転試験を実施して、スタックと改質器を 同一容器内に収納した基本モジュールおよびMCFCとタ ーボチャージャー発電機とのコンバインド発電システム の信頼性を評価することを目的としている。開発目標を 表2-4-1に示す。また、加圧小型発電システムのフロー を図2-4-5に示す。

2 発電試験

2003年1月初めから総合調整運転を開始し、1月14日に初併入を達成し、発電試験を開始したが、ガスリー



図2-4-4 高圧(1.2MPa)ショートスタック試験における電圧の安定性

#### 表2-4-1 加圧小型発電システムの開発目標

出力	300kW級 (AC)を目標に検証
運転圧力	0.4MPa程度
発電時間	5,000時間以上
燃料ガス	天然ガス
電圧低下率	0.3%/1,000時間程度(200mA/cm <sup>2</sup> にて)
送電端効率	43%以上(HHV基準)

クおよび電圧低下など不具合が発生したため、累積発電 時間631時間の時点で運転停止、調査・原因究明を実施 した。主な不具合原因は下記のとおりである。

・高積層スタックの前処理技術の未確立

・ガスリークを伴う場合の上部セルの燃料不足現象

・マニホールド部の締付力不足

その後、不具合部分を補修して、9月27日より部分 負荷にて発電試験を再び開始し、12月上旬まで連続運 転を実施した。2003年12月上旬までの300kWの加圧小 型発電システムの累積発電時間は、約2,250時間、累積 発電電力量は、約199,000kWhである。

2004年度は、6月中旬頃より、川越試験所内にて、 新たに製作した検証スタックを用いての発電試験を、運 転時間5,000時間以上を目標に実施する予定である。 2-4-3 高性能モジュールの開発

高性能モジュールと既存のガスタービンとを組み合わ せた MCFC コンバインド発電システムは、システム解 析結果より運転圧力 1.2MPa の7MW 級プラントで送電 端効率 55% (LHV 基準)以上が達成できる見通しを得 ている。

本開発では、より高発電効率を目指した中大規模容量 のMCFC発電システムの基本となる高性能モジュール を第111期MCFCプロジェクトにおける要素技術開発の 成果を基に設計・製作し、運転圧力1.2MPaの高圧発電 試験によってその性能を確認することを目的としている。

今後は、2004年10月中旬までに高性能モジュール試 験設備を川越試験所内へ据付けて、発電試験を実施する 予定である。開発目標を表2-4-2に示す。また、高性能 モジュール発電システムフローを図2-4-6に示す。

#### 表2-4-2 高性能モジュールの開発目標

出力	750kW (DC) 級を目標に検証
運転圧力	1.2MPa程度
燃料ガス	天然ガス
発電端効率	47%(LHV基準)



図2-4-5 加圧小型発電システムフロー



図2-4-6 高性能モジュール発電システムフロー

# <sup>2-5</sup> MCFC の位置付けと開発の方向性

## 2-5-1 MCFC の得手・不得手

MCFCはこれまでの開発成果を受けて、今後様々な 用途、分野に適用されていく事が期待される。その導 入・実用化をスムーズに進めるためには、MCFCの持 つ特性を十分に理解し、MCFCのあるべき位置づけと 共に、これからのあるべき技術開発の方向性を明確に認 識する必要がある。

現在開発が進められている燃料電池はその用途として、 事業用、自家用、家庭用、自動車用、携帯用などが想定 されている。その適用先は各燃料電池それぞれがもつ特 徴に合わせたものになり、主な想定適用先は1-2節にて 既に示した通りである。

一般的な発電設備との比較において、燃料電池は、高 い発電効率、優れた環境特性、排熱利用による高い総合 効率、量産化による低コスト化などの特長をもつ。これ らの燃料電池が持つ一般的特長に加えて、MCFCの特 長を改めて挙げれば、まず高温型である事により、ガス タービンとの組み合わせによる高効率発電の実現が可能 で、CO成分を多く含む幅広い炭化水素系燃料の利用が 可能という事になる。さらに付録で示すもう一つの高温 型燃料電池であるSOFCに比較すれば、電極などのシー ト成型法による大面積化、大容量化が容易であることを 挙げる事ができる。これらに加え、MCFCが持つ特異 な特長としては、炭酸イオンを媒体とする事による「炭 酸ガス濃縮機能」(コラム4参照)、炭酸塩を媒体とした 「NOx浄化作用」(4-2-2(1)参照)がある。

一方、MCFCが不得手とする特徴は、高温型である ことによる冷起動時間の長さ、CO<sub>2</sub>リサイクル設備の必 要性などであり、極端な小容量(100kW級以下)分野 への適用には難しさがある。

## 2-5-2 MCFC の位置づけ

欧米では現在 MCFC は中小規模のコージェネレーション電源との位置づけが強い。しかし、上述の特長を踏まえれば、電力系統の信頼性が高く高効率化が進んでいる我が国においては、MCFC はあくまで発電を主体とした高効率で環境特性に優れた電源と位置づけるべきである。すなわち、我が国においては、将来の大型化も視野に入れた自家用あるいは事業用電源として位置づける

事ができる。特に電気事業においては、短期的には、地 域に密着した環境特性に優れた電源として、また、長期 的にはエネルギーセキュリティーやCO<sub>2</sub>排出量を大幅に 削減できる高効率電源として既存火力発電の代替電源と しての活用が考えられる<sup>(1)</sup>。

## 2-5-3 開発の方向性

現在の開発計画は前節で述べたとおりであり、その予 想成果を踏まえれば、これからの開発の方向性としては、 高効率化、長寿命化、低コスト化は将来的にも引き続き 改善されるべき基礎的開発であり、それらに加えて、適 用分野の拡大を目指した以下の方向性を想定しつつ開発 を進めていくべきである。

- 1 都市ガスなどを燃料に用いる発電専用電源を想定し た既存電力システムによる効率を総合的に上回る高効 率化
- 2 負荷調整用高効率電源を想定した上記小型電源への 負荷追従性の付加、運用性の多様化
- 3 地域社会に密着した小型電源を想定した廃棄物やバイオマスなどを適用する燃料の多様化
- 4 天然ガスを燃料とする事業用大型電源を想定した既 存大型火力発電設備を大きく上回る高効率化
- 5 石炭ガス化複合発電を想定した、石炭利用発電所と しての高効率化

次章以降では、これらの開発の方向性を念頭に、これ まで当研究所が進めてきた MCFC の基礎技術、適用拡 大技術について示し、今後の実用化方策を探る。
## コラム3:外部改質と内部改質

現在、火力発電所等で燃料として使用されてい る天然ガスの主成分はメタン(CH<sub>4</sub>)であるが、燃 料電池はメタンを直接、燃料として利用すること ができない。このため、メタンは第1章で述べた ように、改質器で水素(H<sub>2</sub>)に変換される。メタ ン改質反応は以下で示される。

CH<sub>4</sub> + H<sub>2</sub>O = 3H<sub>2</sub> + CO (1) 本レビューではこの改質反応を改質器(リフォ ーマ)で行わせてから水素を電池に供給する外部 改質方式を想定した MCFC についてその研究成果 を示している。

これに対して、本反応を電池内部で行う方式が 内部改質方式であり、その適用は高温型燃料電池 (MCFC, SOFC)に限定される。その主な理由は、 1 内部改質で副反応的に生成される一酸化炭素が PEFCやPAFCで触媒として使用している白金を 被毒する、 2 PEFCやPAFCの運転温度である 200 以下の温度域では改質反応が遅い、3 改質に 必要な水蒸気を多く供給する必要がある、などで ある。 一方、 MCFC、 SOFC では 低温型 (PEFC、 PAFC)とは対照的に、1改質反応で生成される水 素を発電により常に消費するのに加え、改質に必 要な水蒸気が発電により常に供されるため、(1)式 のメタン改質反応が促進されメタンの改質率が向 上し、プラント効率向上につながる、2内部改質 で生成する一酸化炭素も燃料となる、3 電池運転 温度である600~1000 で改質反応が円滑に進行 する、のように内部改質には有利な条件が整って いる。内部改質方式を採用するメリットは、1改 質反応に必要な熱として電池の発電に伴う発熱を

有効利用できる、2 改質器を電池内に設 けるため、プラントとしてはコンパクト な設計が可能となる、3 改質により熱が 吸収されるため電池冷却に必要な動力を 低減できる、などである。内部改質方式 では、発電に伴う発熱量の60%が改質反 応に利用されるため、電池を冷却する動 力を大幅に抑制することが可能となる。

図には、改質方式の違いを示す。外部 改質方式ではアノード排ガスを燃焼させ、 改質用の熱を賄い、また、電池冷却のた めカソードガスを循環させる。内部改質 方式では、電池で発生する熱で改質を行 うため、冷却に必要なカソードガス循環 量も少量で済む。

また、内部改質方式には、直接内部改

質方式と間接内部改質方式の2方式がある。これ らの違いは改質触媒の位置であり、触媒は、直接 方式ではアノード内に設置されるが、間接方式で は電池とは別の容器内に設置され、この容器は電 池にサンドイッチされて、電池からの熱を有効利 用できる。間接方式にする理由は、MCFCでは改 質触媒が電解質に接触すると触媒能力が低下する ためであり、SOFCでは電池入口部で急激に起こり 易い改質反応を抑制するためである。間接内部方 式は、アノードで発生する水蒸気を有効利用でき ないため、改質効率は直接方式よりも低いが、上 記のようなメリットがあるため、両者を組み合わ せて使用される場合もある。

このような内部改質方式では、図に示すように 電池部分の構造が複雑になるが、改質器が不要で あり、コンパクトなシステムを組むことができる ため、小型プラントに向いていると考えられる。 しかし、電池温度を制御するための電池内におけ る触媒配置の工夫や、改質触媒が劣化した場合に は電池ごと交換する必要があるため改質触媒の寿 命延伸など、高度な技術が必要となる。

一方、外部改質方式は大型プラントに向いてい ると考えられる。これは、改質触媒の交換等の管 理が容易であり、電池構造もシンプルであり、電 池の温度制御もカソードガス流量の制御で容易で あるためである。特に、バイオマス、廃棄物、石 炭等のガス化ガスの成分は一酸化炭素や水素が主 体でメタンは多く含まれないため、メタンを改質 する必要性は低く、シンプルな外部改質方式が向 いている。



T BERR BERRING LT L. BRIVING THE LT L. BLUCKING-THEREBRER L. BLUCKING-THEREBRER

音

第

実用化へのキーテク ノロジー(実用レベ ルを支える基盤技術)

MCFCの実用化のためには、まずその性能を正確に評価しなければならない。当研 究所が開発した性能表示式は電極反応の理論式から導き出したもので、電池性能を決 める要因を詳細に分析でき、改善点を示すことが可能である。Li/Na系電解質は、こ の評価法による従来電池の解析結果をもとに、当研究所が見直し提案した新しい電解 質で、電池電圧の向上と長寿命化に大きな効果がある。性能表示式とLi/Na系電解質 は、国内外で利用・適用が進みつつある。さらに当研究所では、これらの成果をもと に、電池の大型化、積層化の改良を重ね、10kW級MCFCで1万時間の寿命を実証し た。 第3章 実用化へのキーテクノロジー(実用レベルを支える基盤技術) 目次

		横須賀研究所	エネルギー化学部	主任研究員	森田	寛
		横須賀研究所	エネルギー化学部	主任研究員	吉葉	史彦
		横須賀研究所	エネルギー化学部	主任研究員	吉川	将洋
		横須賀研究所	エネルギー化学部	主任研究員	浅野	浩一
		横須賀研究所	エネルギー化学部	上席研究員	伊崎	慶之
3 - 1	性能解析と評価技術					39
3 - 2	セルの高性能化と長寿命化					44
3 - 3	大出力化のためのスタック技術 .					50
コラム4	:炭素析出とその抑制					56



森田 寛(1992年入所) これまで小型単セルを用いた MCFC の性 能および寿命評価を中心に研究を進めてきた。 今後は石炭、バイオマス等のガス化ガスに代 表される多様な燃料を使用可能にする MCFC発電システムの実用化を念頭に置き ながら、電池本体のみならず電池周辺技術に 関しても検討を進めていく。

(3-1執筆)



吉川 将洋(1992年入所)

MCFCの研究に携わり、これまで主に長 寿命化研究としてニッケル短絡抑制手法の開 発、性能評価手法の開発、高圧運転技術の開 発を行ってきた。この間、MCFC研究組合 に出向しスタックでの高圧運転適合性評価や 300kW級モジュールの運転研究にも従事。 今後は更なる長寿命化のため腐食抑制技術の 開発に取り組みたい。

(3-2およびコラム4執筆)

伊崎 慶之(22ページに掲載) (3-3執筆) 吉葉 史彦(8ページに掲載) (3-1-4執筆)



浅野 浩一(1997年入所) これまで MCFC の研究に携わり、電池高 性能化研究において、ミクロレベルからの電 極反応メカニズムの解明について検討を行っ てきた。また、MCFC 長寿命化研究として ニッケル短絡抑制手法の開発にも従事してい る。今後は、MCFC発電の実用化に向けた 研究以外に燃料電池の新たな可能性について も研究を行いたい。

(3-2執筆)

# <sup>3-1</sup> 性能解析と評価技術

MCFCに用いられる燃料には、天然ガスから石炭ガ ス化ガスまでの広範囲な燃料が想定されており、想定さ れる燃料によって、その発電規模、機器構成は大きく異 なる。このためMCFC発電プラントの設計、運用に際 しては、広範囲な運転状況下におけるMCFC本体の電 池性能を精度良く予測する必要がある。本節では、この 電池性能を高精度に記述することが可能なMCFCの性 能表示式について述べる。

## 3-1-1 電池の性能要因

MCFCによる発電反応は、以下に示すアノード(燃料極)とカソード(空気極)との電気化学反応より構成 され、MCFCの出力特性(電流 - 電圧特性)は一般に、 図3-1-1に示すような傾向を示す。燃料電池においては、 電流は運転条件として予め決定されるため、所定の電流 時における電池電圧が、性能を表す指標となる。

$$\mathcal{P} \mathcal{I} - \mathcal{F} : H_2 + CO_3^{2-} \rightarrow H_2O + CO_2 + 2e^-$$
 (3-1-1)

カソード: 
$$\frac{1}{2}O_2 + CO_2 + 2e^- \rightarrow CO_3^{2-}$$
 (3-1-2)

**全** 体 : H<sub>2</sub> +  $\frac{1}{2}$ O<sub>2</sub> → H<sub>2</sub>O (3-1-3)



図3-1-1 MCFCの電流 - 電圧特性

MCFCの出力特性は直線的領域が大部分を占め、この 直線領域が、発電用電源としての運用領域であると思わ れる。電池の出力電圧 Vは一般に(3-1-4)式で与えら れるが、直線領域内での出力電圧は(3-1-5)式で近似で きる。

$$V = E - \eta_{ne} - \eta_{ir} - \eta_a - \eta_c$$
 (3-1-4)

$$\cong E - \eta_{ne} - (R_{ir} + R_a + R_c) \times J$$
(3-1-5)

式中の各性能要因の概要は、以下の通りである。

### 1 開回路電圧 E

負荷電流Jを取り出していない場合の電池電圧であり、 電池の最大起電力に相当する。MCFCの場合は、次式 に示すネルンスト式の濃度補正項 Eに、各極のガス 分圧 Pi(a/c)(iはガス種、aはアノード、cはカノード を表す)を代入した計算値で実測値をほぼ整理できる。

$$E = E^{0} + \Delta E_{a} + \Delta E_{c}$$
  
=  $E^{0} + \frac{RT}{2F} \ln \frac{P_{H_{2}}}{P_{H_{2}O}P_{CO_{2}a}} + \frac{RT}{2F} \ln P_{O_{2}}^{0.5} P_{CO_{2}c}$   
(3-1-6)

ここで  $E^{0}$ は標準電極電位と呼ばれる値であり、電池の 運転温度を考慮した (3-1-3)式のギブズ自由エネルギー 変化から求めることが可能である。  $E_{a}$ 、  $E_{c}$ はアノ ード、カソードにおける濃度補正項、F、R、Tはファ ラデー定数、気体定数、温度である。

2 ネルンストロス ne

(3-1-1)式、(3-1-2)式によって負荷電流を取り出し た場合、アノードではH<sub>2</sub>が、カソードではO<sub>2</sub>とCO<sub>2</sub>が、 電池の入口から出口に向かって減少する。この減少によ る各極のガス濃度変化は、(3-1-6)式における濃度補正 項の値を変化させ、電池面内ではネルンスト式による起 電力が図3-1-2に示すように低下する。この低下分はネ ルンストロスと呼ばれ、電池入口のガス組成、各ガスの 利用率によって決定される。ガス利用率とは、電池に供



図3-1-2 起電力のセル内分布(アノード側)

給されたガス量に対する(3-1-1)式、(3-1-2)式による 消費割合を表すものであり、アノードでは燃料ガス (H<sub>2</sub> + CO)、カソードではO<sub>2</sub>とCO<sub>2</sub>の2つが考えられる。 MCFCにおけるネルンストロス分は一般に、アノード 側の方が大きく、天然ガスの改質ガスを電池の燃料とし て用いた場合は、このネルンストロスがアノードにおけ る性能低下の大部分を占める。ネルンストロスは上述し たように、電池の入口組成、ガス利用率といった電池外 部との取り合い条件によって決定されるため、電池の電 極性能とは、ほぼ無関係に決まってしまう性能低下要因 である。

3 内部抵抗 R<sub>ir</sub>

電池の構成部材に起因する抵抗であり、電圧低下 ir に対応する。MCFCの場合には、「溶融炭酸塩電解質の イオン導電性に基づく抵抗」、「電極、集電板等の電子伝 導性に基づく抵抗」、「電極、集電板、電流リード線間の 接触抵抗」から成り、ほぼ温度のみに依存する性能低下 要因である。10cm角程度の小型単セルでは主に、微小 交流信号1kHz下での実抵抗として評価されることが多 いが、高積層スタック用の1m<sup>2</sup>級セルでは、抵抗値自体 がセル面積に反比例して小さくなる等の要因により、上 記測定手法が必ずしも適用できるとは限らない。

4 アノード反応抵抗 R<sub>a</sub>

(3-1-1)式によるH2の酸化反応が生じる際、アノー ド側で起こる電気化学的な電圧ロス aを負荷電流Jで 割り付け、抵抗換算した性能低下要因であり、圧力、温 度、燃料ガス組成に依存する。多くの小型単セル試験の 結果から判断すると、カソード側のロスよりも小さく、 特に高水素濃度燃料である天然ガスの改質ガス条件下で は、電池の性能に与える影響は小さい。

5 カソード反応抵抗 *R*<sub>c</sub>

(3-1-2)式によるO<sub>2</sub>の還元反応が、カソード側で生 じる際に起こる電圧ロス 。を抵抗換算した値であり、 MCFCの電極性能を決定する支配的要因となっている。 この値もアノード側同様、圧力、温度、ガス組成に依存 する。

なお電気化学反応に起因する電圧ロス 。 。は反応 過電圧とも呼ばれ、「電子移動反応における電荷移動速 度」と「反応ガスが拡散等により電極表面にまで達する 際の物質移動速度」の大小によって決定される。この移 動速度のより遅い過程を律速過程と呼び、この律速過程 の速度が、過電圧の大きさを決定する主要因となる。

### 3-1-2 性能表示式

電池性能の指針である出力電圧を記述、予想するモデ ルは主に、小型単セルを用いて検討がなされてきており、 歴史的には幾つかのモデルが提案されている<sup>(1)~(3)</sup>。 しかしながらこれらのモデルでは、冒頭で上述したよう な広範囲な運転状況下における電池性能を、精度良く予 測することは困難であった。この原因は、アノード、カ ソードで生じる電気化学的な電圧ロスを、精度良く見積 もることができない点にある。特にカソード側の電圧ロ スは、アノード側に比べて大きいため、このカソード側 ロスを電気化学的な考察<sup>(415)</sup>に基づいて精度良く記述 することが、MCFCにおける性能予測の鍵となる。

カソードの $O_2$ 還元反応は、MCFCでは(3-1-2)式で 与えられるが、この反応は溶融塩中に溶解した分子状酸 素( $O_2$ )の直接還元ではなく、酸素分子が溶融塩中に 化学溶解し、生成したスーパーオキサイドイオン( $O_2^{-1}$ ) あるいはパーオキサイドイオン( $O_2^{2-}$ )が、反応の担 い手となって進行するとされる。更に、電気化学的な上 記反応の解析によれば、スーパーオキサイドイオン ( $O_2^{-1}$ )と溶存CO<sub>2</sub>の同時拡散律速で、反応次数は上手 く説明できるとされる。図3-1-3にその同時拡散の模式 図を示す。

同時拡散が律速過程である場合、図の電子移動反応<sup>3</sup>、 4 における電荷移動速度は比較的速く、溶融塩中におけ る O<sub>2</sub><sup>-</sup>、CO<sub>2</sub>の物質移動速度が、電荷移動速度に比べて



図3-1-3 カソードでの酸素還元反応

遅いことになる。上記のような反応メカニズムが、実際のMCFCにも成り立つ場合、カソードの反応過電圧を 表すカソード反応抵抗式は、一定の圧力、温度下において、以下に示すガス分圧依存性をもつことが期待される。

$$R_{\rm c} = c_1 P_{\rm O_2}^{-0.75} P_{\rm CO_2}^{0.5} + c_2 P_{\rm CO_2}^{-1.0}$$
(3-1-7)

右辺第1項は酸素すなわちスーパーオキサイドイオンの 拡散項、第2項は溶存CO<sub>2</sub>の拡散項であり、物質移動に 関する係数*c*<sub>1</sub>、*c*<sub>2</sub>は主に、小型単セルの実験データよ り決定されるフィッティングパラメータである。図3-1-4には、(3-1-7)式を用いて予測した出力電圧のカソ ードガス組成依存性を実測値に対して示す<sup>(6)</sup>。経験的



図3-1-4 電池性能のカソードガス組成依存性

な従来式<sup>(3)</sup>では、上手く表示でき得なかった出力特性 を、(3-1-7)式は広範囲にわたり精度良く表示できてい る。

アノードの反応過電圧はカソードに比べて小さく、天 然ガスの改質ガス条件では、アノード反応抵抗をガス組 成に依存しない定数として扱っても、表示上の大きな誤 差は生じない。しかし石炭ガス化ガス等の低水素濃度ガ ス下では、その過電圧は増加し、定数的扱いは困難とな る。小型単セルの試験結果によれば、この過電圧は水素 分圧の約 - 0.5 乗に比例して増加する<sup>(7)</sup>。

また温度の依存性に関しては、(3-1-5)式における各 抵抗成分は、いずれもアレニウスプロット(抵抗の対数 表示 vs.温度の逆数)で整理できる。アノード、カソー ドの反応抵抗において、この温度依存性は、カソード側 であれば(3-1-7)式中の係数 *c*<sub>1</sub>、*c*<sub>2</sub>の依存性に帰する ことができる。これらの実験結果より、性能表示式にお ける各抵抗成分の式として、次式を導出した。

$$R_{ir} = A_{ir} \exp\left(\frac{\Delta H_{ir}}{RT}\right)$$
(3-1-8)

$$R_a = A_a \exp\left(\frac{\Delta H_a}{RT}\right) P_{\rm H_2}^{-0.5}$$
(3-1-9)

$$R_{c} = A_{c_{1}} \exp\left(\frac{\Delta H_{c_{1}}}{RT}\right) P_{O_{2}}^{-0.75} P_{CO_{2}}^{0.5} + A_{c_{2}} \exp\left(\frac{\Delta H_{c_{2}}}{RT}\right) M_{CO_{2}}^{-1.0}$$
(3-1-10)

ここで A、 Hは、各成分における頻度係数、活性化 エネルギーに相当する。A、 H値に関しては、同一仕 様の発電部材(電極、電解質板)を用いたセルでは、ほ ぼ同程度の値をとる。図3-1-5には、上記の温度依存性 より推算した予測値と実測値との比較を示す。推算した 予測値は、実測値を精度良く表示できている。

反応抵抗の圧力依存性に関しては、各ガス種の分圧効 果として表されるが、実際のMCFC圧力特性では、(3-1-7)式のCO<sub>2</sub>に関する分圧効果はほとんど認められず、 濃度のみの依存性を示す。このため(3-1-10)式では、 CO<sub>2</sub>の濃度項*M*CO<sub>2</sub>として表示している。(3-1-5)式に (3-1-8)~(3-1-10)式を組み込んだ性能表示式の表示精 度は、図3-1-1に示した直線領域内であれば、実測値の 出力電圧に対して±5mV以内の表示精度を有している



図3-1-5 電池性能の温度特性予測

ことが、多くの小型単セル試験により確認されている。

3-1-3 性能表示式による性能および寿命分析

性能表示式による性能予測は、各性能要因の定量を基 に行われるため、同時に性能分析も可能となる。図3-1-6には、ある小型単セルの圧力特性分析を示す。運転 圧力Pの増加とともにMCFC性能は向上するが、この 向上分は、「(3-1-6)式の濃度補正項におけるガス分圧上



図3-1-6 電池の圧力特性分析(Li/Kセル)

昇による開回路電圧の増加」、「(3-1-10)式における酸素 すなわちスーパーオキサイドイオンに関する圧力項(  $P^{.025}$ )減少によるカソード反応抵抗の低下」が主な要 因である。圧力項の減少は、加圧により図3-1-3におけ る酸素の化学溶解反応 1が進み、溶融塩中のスーパーオ キサイドイオン濃度が上昇したことに対応する。図3-1-5に示したMCFCの温度低下による性能低下分は、いず れのセルにおいても主に、「O<sub>2</sub>に関するカソード反応抵 抗の増加」によって生じ、これは(3-1-10)式における 活性化エネルギー値  $H_{C1}$ が、他の H値に比べて大 きいことに起因する。このような表示式分析により現在 では、MCFC性能の支配的要因であるカソード側の反 応挙動を、詳細かつ定量的に把握することが可能となっ ている。

MCFCの寿命に関しては、次節にて述べるニッケル 短絡が電池内で生じない限り、MCFC性能の経時劣化 は、運転時間*t*に対して緩やかな劣化挙動を示す。この 劣化挙動は、(3-1-5)式における各抵抗成分の経時増加 として記述できる。

$$V(t) = E - \eta_{ne} - \{R_{ir}(t) + R_a(t) + R_c(t)\} \times J \quad (3-1-11)$$

(3-1-11)式における各抵抗成分の経時増加は更に、(3-1-8)~(3-1-10)式における抵抗成分*R<sub>i</sub>*の*A<sub>i</sub>*, *H<sub>i</sub>*値の経時変化と見なすことができる。

$$R_i(t) = A_i(t) \exp\left(\frac{\Delta H_i(t)}{RT}\right) \propto A_i(t)$$
 (3-1-12)

5000時間以上の小型単セル連続運転を通じて、各A<sub>ハ</sub>

*H*;値を解析した場合、いずれの抵抗成分においても、 活性化エネルギー *H*<sub>i</sub>(*t*)の時間依存性は認められず、 その依存性は頻度係数項*A*<sub>i</sub>(*t*)の経時増加にある<sup>(8)</sup>。 頻度係数項を「電池内の発電有効面積に対応する量的変 数」、活性化エネルギーを「電池内の材料特性および反 応メカニズムに対応する質的変数」と見なすならば、 MCFCの緩やかな経時劣化現象は、「電解質損失に起因 する電池内の発電有効面積の減少」と理解できる。更に、 運転終了後のセル解体分析結果より判断すると、この電 解質損失は主に、「カソード側の集電板と炭酸塩との腐 食反応」により生じていると推定される。よって MCFCの長寿命化技術としては、ニッケル短絡防止と ともにカソード側の集電板腐食の長期的抑制が今後の課 題である。

# 3-1-4 大型スタックの性能解析・評価

上述した性能表示式は、小型単セルのデータを基に導 出されたものであり、小型単セルの場合は、電池面内の 温度は一定と見なし、解析することが可能である。しか しながら100kW級以上の大型、高積層MCFCスタック の場合、(3-1-3)式に示した発熱反応によりスタック内 部は、電池入口から出口に向かって温度が上昇する温度 分布をもつ。この温度分布は、電池性能を考慮したスタ ック内部での熱・物質収支を解くことにより推定可能で ある(9)。この場合に用いられる性能表示式の抵抗パラメ H)は、小型単セルとスタックが同一 ->値(A、 の発電部材であれば、小型単セルで得られた値を用いる ことができる。すなわち、スタック内部をいくつかの微 小区間に分割し、単セル試験から導出された性能表示式 をスタック内局所における電流 - 電圧特性に適用すれば、 スタックの出力電圧およびスタック内部での発熱量を定 量化し、温度分布を求めることができる。発電時にお ける発熱量は、スタックからの出力電圧を求めること により、消費された燃料の発熱量から算出できる (9)~ (11)。またスタック内部解析においては、積層方向にお けるセル間の接触抵抗分を考慮する必要がある。この 接触抵抗分は、小型単セルとスタックの初期性能比較 により、(3-1-8)式での内部抵抗にある補正係数を掛け ることで考慮される。現状では、1.2~1.3程度の補正 係数値が用いられている。

このような数値解析を用いて、実用規模でのスタック 発電特性を評価する場合、10kW 程度の出力規模を有す るスタック発電試験を実施し、実際の温度分布と数値解 析結果とを比較し、開発した数値解析モデルの有効性お よび精度を検証することが有用である。ここでは、 10kW 級スタック試験で得られた発電特性に対して適用 した内部状態解析モデルの有効性について示す。

図3-1-7に10kW級スタック(0.5m<sup>2</sup>×14セル積層、 図3-3-6と図3-3-7の「1998年10kWスタック」に対応) の発電性能として、各セルにおける出力電圧の燃料利用 率依存性を示す<sup>(12)</sup>。セルNo. 14、即ち積層方向に対し て最下部に位置するセルでは、燃料利用率の上昇に対し てセル電圧の低下する割合が小さくなっている。このこ とは、本セルへの燃料供給量が、他のセルに対して多く なっていることに起因すると考えられる。No. 14以外の セルについての燃料利用率特性は、数値解析結果から得 られた電圧の傾向と良く一致しており、単セルにおける 電池の性能が大型スタックにおいても十分に発揮されて いることが分かる。また、セル電圧に関する数値解析結 果は十mV程度の精度で実測値と良く一致しており、上 記数値解析手法がスタックの性能解析に有効であること を示している。

次に、同じ10kW級スタックの内部温度分布の実測値 と数値解析結果との比較を示す。比較対象とした位置は スタックの中心部分であり、ガスの流れ方向について比 較を行った。スタック入口ガス温度については、マニホ ールド部(ガス供給部分)のガス温度測定結果を用いた。 図3-1-8にスタック内部の温度分布測定結果を、解析結 果と共に示す。また、同図には電流密度分布の解析結果







図3-1-8 10kW級スタックの温度分布実測値と温度分布及び電流密度 分布の解析結果

も併せて示す。ガス入口側半分の温度上昇が大きくなっ ているが、これは電流密度がガス入口側で高くなってお り、入口側における発熱量が大きくなったことを示して いる。スタックの温度測定値と数値解析結果は概ね一致 しており、本解析手法がスタック内部の温度分布解析に も有効であることを示している。 10kW級スタックは、実用型の高積層スタックの発電 性能や温度分布を評価するための必要最小限の単位であ り、ここで述べたスタック発電性能や温度分布の推定手 法は、実用段階におけるスタック性能評価手法として、 有効な活用が期待できる。

# 3-2 セルの高性能化と長寿命化

MCFCを実用化するためには、スタックの高出力・ 長寿命化が不可欠であり、高い出力電圧を得るための電 池内部抵抗の低減、寿命の改善に向けた電解質損失の抑 制とニッケル短絡(電極材料であるニッケルの電解質中 への溶解と再析出による内部短絡、3-2-4項で詳述)の 抑制が必要である。出力電圧を改善するための有力な解 決方法として当研究所では電解質組成に着目し、その組 成の適用性について、実際のセル発電試験を中心とした 検討を行ってきた。また、寿命を改善するため、ニッケ ル短絡に関しては当研究所では早い段階からその現象を 把握し、運転条件や電池仕様と短絡発生時間との関連を 明らかにしてきており、この現象を短時間で評価するた めの加速試験方法を確立している。そこで、以下ではこ の電解質組成選定と実際のセルでの諸特性や種々のニッ ケル短絡抑制方法の寿命延伸効果について得られた成果 を紹介する。

## 3-2-1 電解質組成の選定

MCFCの電解質は、1921年のBaurによって試作され たNa<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>とK<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>の等モル混合塩が最初の適用例であ る。その後、MCFCの電解質組成は、Li、K、Naの3 種の炭酸塩とその混合系において検討されてきた。1970 年代になって主流となったLi/K系電解質(主として Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>/K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>=62/38モル比の共晶塩)は、当時の米国 IGTの研究成果によるところが大きい。Li/K系電解質 は、MCFCの運転温度範囲において、液体である組成 範囲が広く、腐食などによる組成のずれに対しても取り 扱いが容易であったことが選択の一因であったと推定さ れる。我が国のMCFCは、1981年から通産省のムーン ライト計画に組み込まれ、前記IGTの研究結果に強く 影響を受け、炭酸塩組成はその詳細な検討が十分に行わ れないままに、一定レベル以上の性能を示すLi/K系電 解質によって開発が進んだ。しかし、近年では高性能化 を目指した加圧運転試験(0.3~0.7MPa)が活発に行わ れ、Li/K系電解質におけるニッケル短絡現象が顕在化 するようになり、その対策の必要性が高まってきた。

当研究所では、その対策の一環として Li/Na 系電解質 (主としてLi<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>/Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>=53/47 モル比の共晶塩)に注 目し、その適用性について、セル発電試験を中心とした 検討を1993年度から進めてきた<sup>(1)~(4)</sup>。表3-2-1に従来 のLi/K系電解質と新たに選定したLi/Na系電解質の各 種物性値の違いを比較して示す。一般に内部抵抗に関係 する導電率と電極反応抵抗に関係するガス溶解度は、ト レードオフの関係を持つ。従って、Li/Na系はLi/K系 と比較して、融点、密度、粘度などはほぼ同じであるが、 酸素溶解度、ニッケル溶解度、蒸気圧は小さく、導電率 は高い。これらの物性値から Li/Na 系は、カソード反応 抵抗は大きくなる可能性はあるものの、内部抵抗が小さ く運転圧力を上げれば酸素溶解度も増すため出力電圧を 高くできる可能性があり、さらにニッケル短絡発生時間 を遅延できる可能性がある炭酸塩であることが分かる。

#### 3-2-2 電解質組成変更によるセル電圧の向上

Li/Na系電解質を用いたセルを試作し、その初期特性 を測定した例を圧力特性として図3-2-1に示すい。図か ら明らかなようにLi/Na系セルでは、0.1~4.5MPaの圧 力範囲にわたってLi/K系の場合よりも高いセル電圧を 示した。なお、3.5MPa以上の運転圧力で出力電圧が低 下した理由は燃料ガス中でメタン生成量が多くなるため である。また図 3-2-1 のうち 圧力 1.6 MPa における 電圧低

				( Li/K )₂CO3	( Li/Na )₂CO₃
組	組 成		mol%	62 : 38	53:47
融		点		488	495.8
塩	基	度	PO <sup>2 -</sup>	6.9	6.62
11	ケル溶館	解度	mol fraction( $\times 10^{-6}$ )	41.9	22
表	面張	力	( N/m )	0.22	0.24
阏		度	( g/cm <sup>3</sup> )	1.93 1.97	
粘		度	( Ns/m <sup>2</sup> )	8.3 × 10 <sup>-3</sup> 8.1 × 10	
蒸	気	圧	( g/cm <sup>3</sup> )	- 3.2 × 10 <sup>-10</sup>	- 3.5 × 10 <sup>- 10</sup>
導	電	率	(1/ cm)	1.4 ~ 1.6	2.1 ~ 2.3
O <sub>2</sub>	溶解	度	mol/cm <sup>3</sup> atm	3.3 × 10 <sup>-7*</sup>	1.8 × 10 <sup>-7</sup>
			650 における物性値	*( Li	/K ) <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> = 50 : 50

表3-2-1 Li/K系とLi/Na系電解質の代表的な物性値

650 における物性値



図3-2-1 Li/Na系電解質による単セル電圧と圧力の効果

下要因を3-1節の手法を用いて分析した結果を図3-2-2 に示す。当初懸念していた低酸素溶解度に起因するカソ ードの反応抵抗の増大は認められず、逆に小さくなった。 さらに高導電率に起因する内部抵抗(IR) ロスの減少 が認められセルの高電圧化に大きく寄与している。

1 MPa以上の高圧領域では過電圧が減少するため全 電圧降下分に占める内部抵抗による電圧降下分の割合が 高くなる。このため内部抵抗の小さいLi/Na系は高電流 密度で運転するほどLi/K系との差異が顕著となる。図 3-2-3 に圧力 0.1 MPa、 1.6 MPa、 3.5 MPa で電流密度を変 化させた場合の出力電圧と出力密度の例を示すい。運転 圧力 1.6MPa、電流密度 150mA/cm<sup>2</sup>において、Li/K系 セルでは1.3kW/m<sup>2</sup>の出力密度であり、Li/Na系セルで は1.4kW/m<sup>2</sup>であったが、高電流密度400mA/cm<sup>2</sup>の条 件ではLi/K系セルでは電圧低下が大きくデータを取得



図3-2-2 圧力1.6MPaにおける電圧降下の内訳



図3-2-3 Li/Na系セルの高電流密度特性

できなかったのに対し、Li/Na系セルでは、3.3kW/m<sup>2</sup> の出力密度を達成することを確認し、Li/Na系の優位性 を明らかにできた。

### 3-2-3 長時間運転

MCFCが実用化されるためには初期導入コストや減価償却などの経済性を考慮して4万時間程度の寿命が必要とされている。MCFCの電圧は、図3-2-4のように運転初期より緩慢な電圧低下を生じ、所内補機類動作範囲との兼ね合いにより、4万時間後の低下量を初期電圧の



図3-2-4 MCFCにおけるセル電圧の経時変化

10%以内にすることが開発の目標値となっている。つま り、電圧低下率としての目標は0.25%/1,000時間となる。 また、セル電圧はある時点を境に急激な電圧降下を生じ る。この急激な電圧降下の起点はニッケル短絡によるも のであり、短絡発生を4万時間以降に遅延しなければ、 短絡発生時点が寿命になると考えられる。

実際の単セルを用いた場合の長時間連続運転特性につい て、図3-2-5にLi/Na系電解質を用いたセルにおける 625 、17,500時間に及ぶ長時間電圧低下特性を、図3-2-6に約2,000時間毎の要因分析結果を示す<sup>(6)</sup>。但し、本 試験では5,000時間時点で一度、電解質補充を行ってい る。出力電圧低下要因は内部抵抗(IR)ロスの経時増 加のみによって生じ、カソードやアノードの反応過電圧 増加による電圧低下はほとんど生じていないことが分か



図3-2-5 Li/Na系 625 17,500時間連続運転特性

	_ 出力電	[庄 IR口	ス	カソード 過電圧	アノー 過電日	ドネルンス E ロス	ト 開路 電圧
208hr	767	33		115	8	93	
3160hr	757	33		122	12	93	
5032hr	755	35		125	9	93	
7144hr	44hr 749			128 10		93	
10168hr	750	43		121	12	93	
12880hr	746	48		121	10	92	
15764hr 739		55		124	8	92	
17488hr	732	60		124	11	92	
700 750 800 850 900 950 1000 セル電圧(mV)							

図3-2-6 Li/Na系625 運転セルの性能経時分析

る。また、電圧低下率は、電流密度150mA/cm<sup>2</sup>におい て 0.29%/1,000 時間であり、目標電圧低下率である 0.25%/1,000 時間をほぼ満足する結果が得られている。

3-2-4 ニッケル短絡現象への取り組み

現在一般的に使用されている MCFC のカソードは多 孔質の Niをセル内で in-situ 酸化したリチウム化 NiO で ある。この NiO の溶融炭酸塩に対する溶解は(3-2-1) 式に示す酸性溶解

$$NiO + CO_2 = Ni_2 + CO_3^2$$
 (3-2-1)

と(3-2-2)式に示す塩基性溶解

 $NiO + CO_3^{2} = NiO_2^{2} + CO_2$  (3-2-2)

の二形態があり、MCFCの運転条件下では酸性溶解が 支配的であると考えられている。つまりカソードガス中 に供給するCO2濃度が高いほど式の反応は右辺へ進む。 いずれの機構にせよ飽和溶解度に達すればNiOの溶解 は停止する。しかし、(3-2-3)式に示す溶解したNi<sup>2+</sup>イ オンが燃料極側から拡散してくるH2によって還元され て金属Niになれば、電解質板内にNi<sup>2+</sup>イオンの濃度勾 配が生じるため、電解質板中のNiOの溶解度は飽和に 達することなく(3-2-1)式の反応は持続することになる。

$$Ni^{2+} + H_2 + CO_3^{2-} = Ni + H_2O + CO_2$$
 (3-2-3)

これがNiOカソードの溶解・析出として問題となって おり、電池の運転時間が長時間になれば、電解質板中に 金属Niが析出し、アノードとカソード間でニッケルに よる内部短絡を引き起こすことになる(図3-2-7)。ま た、一旦ニッケル短絡現象が生じると、電圧はそれまで の緩慢な低下と比較し、図3-2-4のように急激に低下し てしまう。

このように、MCFCの高性能化および長寿命化のた めには、ニッケル短絡の抑制が大きなカギとなる。当研 究所では一般的にニッケル短絡が寿命を大きく左右する 問題として認識される以前から、先行して小型単セルを 用いた実験でニッケル短絡現象を確認し、電池寿命に対 する炭酸ガス分圧および電解質板(マトリクス)厚さの 依存性などニッケル短絡現象に関する知見を報告してき た。電池寿命に対する炭酸ガスとマトリクス厚さの関係 は、次の(3-2-4)式によって表される。

$$t_{\rm sc} = A \times P_{\rm CO_2}^{\alpha} \times L^{\beta} \tag{3-2-4}$$

ここで、 $t_{sc}$ :ニッケル短絡開始時間(h)  $P_{CO_2}$ :炭酸 ガス分圧(atm)、L:マトリクス厚さ(cm)である。 また、乗数 および は、これまでの知見では、 = -1および =1.6 ~ 2.1である。

しかしながら、ニッケル短絡は数千時間以上のオーダ ーで発現する現象であり、その抑制方法を確立するため



図3-2-7 MCFCにおけるニッケル短絡現象の模式図

には従来のセル試験手法による検討では非常に多くの時間と労力が必要となる。例えば、図3-2-5や図3-2-6で 示したセルでは開回路電圧は経時的に変化しておらず、 この運転条件においては17,500時間の運転時間において もニッケル短絡現象は発生していない。そこで、当研究 所では、これまでの数気圧までのセル試験結果をもとに、 ニッケル短絡現象がカソード側に供給する炭酸ガス分圧 に反比例して発現することに着目し、図3-2-8に示すよ うな2MPa(写真手前の装置)や5MPa(写真奥の装置) までの試験が可能な装置を設置し、加速試験法の確立を 図ることにした。その結果、電解質へのニッケル析出量 が明らかにその加速効果を示唆する結果を得た<sup>(5)</sup>。そこ で本試験装置を使用してニッケル短絡抑制方法の確立を 目指し様々な対策を施したセルの加速試験を実施してい る。

我が国の電気事業が要求する高効率 MCFC-GT 複合発 電システムでは、高圧(1.2MPa 程度以上)下で寿命目 標である4万時間作動させることを目指しており、(3-2-4)式からもわかるように、高圧条件下ではニッケル短 絡現象が短時間で発生し易くなり、MCFCの寿命に大 きな影響を及ぼすことが懸念される。ニッケル短絡現象 を抑制するための手法としては、1溶出元のカソード材 を変更する(カソード改良) 2 NiOカソードが溶出し にくい炭酸塩組成とする、3 短絡パスを形成しにくい電 解質板構造とする(電解質板変更)等のアプローチがあ る。当研究所においては表3-2-2に示す種々の短絡抑制 方法を立案し試行錯誤を繰り返しながらそれら単独や組 み合わせでの寿命延伸効果を延べ約70 セルを使用して 実験的に検証してきている。次節以降では当研究所にお



図3-2-8 ニッケル短絡加速試験装置

### 表3-2-2 立案した短絡抑制方法



いて、これまでに得られたニッケル短絡抑制手法に関す る知見を紹介する。

# 3-2-5 ニッケル短絡抑制法による MCFC の寿命延伸<sup>(7)</sup>

ニッケル短絡現象を抑制するための手法として前項の 1 に示した NiO に代わる代替カソード材料を開発するこ とも1つの解決手段であり、Fe系、Co系酸化物等の材 料研究が行われているが、過電圧や電気抵抗が大きいな どの問題があり、NiO に匹敵する電池性能は得られてお らず、現段階においては NiO 電極の改良等によって高 い性能を維持しつつ、寿命を延伸させることが現実的な 方策である。

当研究所では、Li/K系電解質においてNiOカソード にFe、Coをそれぞれ添加した改良カソード材を適用し た単セルの寿命延伸効果について実験的に検討した結果、 図3-2-9に示すようにFeを10mol%添加したセルにおい て、従来のセルと比較し約2倍の寿命延伸効果が得られ ることを明らかにした。また、前項2に示したように Li/K系電解質からLi/Na系へ電解質組成を変更するこ とで、導電率の向上による性能向上とともに、ニッケル の溶解度は約半分に減少しており(表3-2-1)、物性値 を反映してニッケル短絡現象が発現するのであれば、 Li/K系セルの約2倍の寿命が期待できる。このため、 当研究所では、Li/K系電解質とLi/Na系電解質を適用 した単セルの寿命延伸効果について実験的に検討した。



図3-2-9 抑制対策を施した単セルの寿命延伸度

その結果、図3-2-9に示すように、LiK系と比較して Li/Na系では約1.6倍の寿命延伸効果が得られた。Li/Na 系電解質は3-2-2項に示したように性能面でも大幅な向 上が期待でき、寿命面と共にその優位性が明らかとなっ た。この結果をもとに3-3節で示すスタック開発を経て 我が国においては、Li/Na系電解質が一般的に適用され るようになり、当研究所の成果がMCFCの性能向上、 長寿命化へ反映されることになった。

さらに前述した寿命延伸効果の高いFe10mol%添加カ ソードと、Li/Na系電解質を組み合わせて、短絡加速試 験を実施した結果、図3-2-9に示すように従来のLi/K系 セルと比較し約3.3倍の寿命延伸効果が得られ、0.13cm 厚みの電解質板を適用した場合、カソード炭酸ガス分圧 が0.08MPaにおいて、約27,000時間にわたってニッケル 短絡が発生せずに運転可能と推定される結果を得た。

# 3-2-6 実用化に向けたニッケル短絡抑制対策の開発<sup>(8)</sup>

当研究所で得られたニッケル短絡抑制手法による知見 をベースとして、現行の国のプロジェクトにおいて、実 用化に向けたニッケル短絡抑制手法を開発している。

ニッケル短絡抑制評価手法としては、(3-2-4)式を用 いて、ニッケル短絡発生時間から係数 A を求め、それ らを比較し、寿命延伸効果を評価した。(3-2-4)式にお ける乗数 および は、これまでの知見から = -1 および =2を暫定的に用いた。

現在のところ、Feの添加量を低減するため添加法を 改良し、Feを被覆した改良カソードを適用し寿命延伸 効果を検討したところ、約1.4倍の寿命延伸効果が得ら れることを明らかにした。

しかしながら、さらに寿命を延伸させるためには、炭酸塩組成を変化させNiOの溶解量を低減する方策を導入する必要がある。このため炭酸塩組成を変更することによりNiOの溶解量低減を図ったLi/Na=70/30mol%、およびBa、Caを添加した炭酸塩(4元系Li/Na/Ba/Ca) 組成をそれぞれ適用し、その組合わせ実験を行った結果、これら全てを組み合わせたセルにおいて、図3-2-10に



図3-2-10 ニッケル短絡複合抑制手法を施した単セルにおける加速試験結果

示すニッケル短絡加速実験の結果を得た。ニッケル短絡 開始時間は、運転開始後約3,700時間であり、(3-2-4)式 をもとに、0.13cm厚みの電解質板を用いて、カソード 炭酸ガス分圧が0.08MPa(高圧運転プラント条件に対応、 2-4-3高性能モジュール、5-3-1(3)1 天然ガス利用分散 型外部改質プラント参照)の場合、約37,000時間までニ ッケル短絡が発生せずに運転可能と推定される結果を得 ている。

このように、ニッケル短絡抑制手法によって、現在の ところ、MCFCのセル寿命は、目標寿命である4万時 間をほぼ達成できる見込みを得つつあるが、一方で、ニ ッケル短絡現象については未だ不明な点も多く存在して いる。例えば温度が低い条件下では析出が多く、短絡時 間も短かくなるといわれているが、詳細は明らかにはな っていない(4-4-2項のシステム解析では考慮した)。今 後はニッケルが析出するマトリクスの微細構造、運転温 度、電流密度等のニッケル短絡現象に影響する諸因子を 詳細に検討し、ニッケル短絡現象を解明する必要がある。 さらに短絡抑制手法を適用したセルの実用化に向け、性 能向上の最適化研究を行うことも必要である。

# 3-3 大出力化のためのスタック技術

MCFC発電プラントの実現には、スタックの大出力 化(大型化)と、その運転技術の確立ならびに運転特性 の把握が不可欠である。

スタックの大出力化については、セルの大型化が基本 であり、製造方法改良によるセル部材の大型成形技術に 加え、積層化に不可欠なセパレータ板の大型化が必要で ある。

また、スタックの運転技術の確立と運転特性の把握に ついては、それら大型セルを構成するセパレータ板の性 能を含めて評価しなければならない。すなわち、プラン ト内でのスタックの運転パラメータとしては、燃料利用 率、運転圧力、酸化剤利用率のみが外部から設定・制御 可能であるが、これらはスタック全体に対する運転条件 であり、スタックを構成する個別のセルに対しては設定 できない。従って、大型セルを積層したスタックにおい ては、セル部材の性能に加え、ガスマニホールド(積層 したセルそれぞれにガスを分配供給する流路)構造やセ パレータ構造などスタック設計に重要な要因によって、 スタック内に必然的に生じる温度分布やガス流配を含め た、より現実に近い状態での総合的な運転特性の把握が 重要になる。そのためには、実際に大型セルを積層した スタックを運転試験し、その結果から、課題の抽出、改 良点の評価を行い、スタック技術の確立を図って行く必 要がある。

本節では、まず、大型セルを積層したスタックの運 転研究において必要となる試験設備ならびに試験方法 について述べる<sup>(1)~(3)</sup>。次に、10kW級スタックを用い た運転研究における、大型セパレータ板の改良・開発 を中心とするスタック化技術について、性能ならびに 信頼性の観点からの技術の変遷と今後の課題について 述べる<sup>(4)(5)</sup>。

### 3-3-1 大面積スタック化技術への挑戦

### (1) スタック運転評価試験装置と基本運転試験法

積層用大面積セル(積層化を前提に設計・製作した大 面積セル)技術や、それらのスタック化技術の開発なら びに運転特性の検討に際しては、運転に必要な大型試験 設備の開発と基本運転試験方法の確立が不可欠である。 当研究所では、それまでの小型単セルや小型スタックで の運転経験を基に、10kW級までの大型セル積層スタッ クを試験できる設備を1988年に設置し、基本運転試験 方法の確立ならびにスタック技術の開発に着手した<sup>(6)</sup>。

試験に供した積層スタックは、メーカーサイトの工場 で組み立てられた後に、低振動車により試験サイトへ搬 入された。試験サイト設置後は、スタックの昇温過程で 必要な前処理を行い、発電可能なスタックとし、その後、 常圧での反応ガスの供給、ガスリークチェック等の機能 確認を行い、運転試験に入った。

運転試験においては、通常、低電流密度(50~ 100mA/cm<sup>2</sup>程度)での性能安定化のためのならし運転 を行い、定格電流密度(150mA/cm<sup>2</sup>)での発電試験に 移行した。初期の発電試験においては、まず、セパレー タ板を含めた運転特性の把握・評価を行うため、燃料利 用率試験(スタックに供給する燃料流量に対するセル毎 の出力電圧の変化を測定し、スタック内部の燃料ガスの 配分状態を評価)、加圧試験(スタックの運転圧力に対 するセル毎の電圧変化を測定し、積層セル毎の電極性能 を評価)等の基本運転特性試験を、カソードガスにより スタック内部の温度制御を随時行いながら実施した。そ の後、各スタックの性能等を考慮し、基準運転条件を設 定し、スタック信頼性確認等のための長期連続運転試験 に移行した。なお、長期連続運転試験においては、定期 的に別途定めた標準条件での発電性能測定を実施した。

### (2) 積層用大面積セル構造の確立と検証

セルの大型化については、セル部材の大型化と同時に、 スタックでの評価が可能な大型セパレータ技術の開発が 必要である。ここでは、アノードガスとカソードガスが セル内で並行して流れる並行流内部マニホールドスタッ ク(図3-3-1)を対象とした、セパレータ板の大型化に 関して、0.3m<sup>2</sup>級から1m<sup>2</sup>級までのセルを用いたスタッ クでの運転試験による検討結果とその開発過程での基本 構造の改良について述べる。

表3-3-1 に、大面積化・積層化技術の検討に使用した 10kW 級スタックの基本仕様を示す。0.3m<sup>2</sup>級の中面積 スタックは、内部マニホールド並行流スタックの基本コ ンセプトの検証を目的に石川島播磨重工業(株)と当研究



図3-3-1 MCFCスタックの構造(並行流、内部マニホールド方式)

所との共同研究において試作したスタックで、初期の運 転特性試験を中心に実施し、スタック運転試験法の基礎 を確立した。大面積スタックIは、その運転評価技術を もとに、国のムーンライト計画において石川島播磨重工 業(株)がスタック大型化のために開発した1m<sup>2</sup>級大型 セパレータを用いたスタックの一号機である。

セパレータは、スタック性能を左右する重要な部品で ある。図3-3-2にその端部断面を示す。初期のセパレー タはセンター板で燃料ガスと酸化剤ガスを仕切り、その 上下にガス流路を確保するための流路板(コルゲート板、

	中面積スタック	大面積スタックト	大面積スタック II		
電極有効面積	約0.3m²( 0.52m × 0.6m )	約1.0m²( 0.	56m × 1.8m)		
積層セル数	18セル	10セル	10セル		
ちパレ ク博浩	薄板多層構造	薄板多層構造	改良薄板多層構造		
ビバレータ構造	スペーサー型端部	ダイヤフラム型端部	プレス成形型端部		
ガス流方式	並行流方式				
電池冷却方式 酸化剤ガス流量制御					
アノード電極	亟 Ni + Cr合金				
重物质/2++++	ドクターブレード法によるシート構造				
电胜具体付例		繊維補強型			
電解質組成	Li/K =	Li/K = 70/30			
カンード電極	In situ酸化によるリチウム化酸化ニッケル				
リシート竜極			MgCO₃添加		

### 表3-3-1 多層構造セパレータを適用したスタックの基本仕様



図3-3-2 多種構造セパレータにおける端部構造の改良

波板)と集電板(パンチングメタル、穴あき板)を配置 した基本構成となっており、さらにその上下外周部にガ スシール部を確保するためのマスク板を取り付けた多重 構造セパレータであった。図3-3-2(a)に示すように、 中面積スタック(0.3m<sup>2</sup>級)のセパレータは製作の容易 さから端部にスペーサを設けた剛構造となっており、ガ スシール部をシール性を確保するには、高い製作精度が 必要であった。これに対して、大面積スタックI(1m<sup>2</sup> 級)では大型化の開発過程において、シール性を確保す る目的から、図3-3-2(b)に示すように、セパレータ 端部構造に柔軟性を持たせるためのダイヤフラム構造を 採用した。

大面積スタックIを運転試験(運転圧力0.3MPa、電 流密度150mA/cm<sup>2</sup>、燃料利用率60%)した結果、スタ ック出力・平均セル電圧は、運転時間400時間をピーク に、緩やかに低下し始め、1,000時間以降においてその 低下は大きくなり、1,400時間以降に急激に低下した (図3-3-6と図3-3-7の「1990年10kWスタック」参照)。 運転終了後の外観観察では、各セルともに、ダイヤフラ ムを適用したセパレータ端部の変形腐食が認められ、特 に電圧低下が大きかったセル近傍での腐食が激しく、セ パレータ端部は、腐食生成物に覆われていた。さらにダ イヤフラム周辺の溶接部では図3-3-3に示すように変形



図3-3-3 セパレータ端部の異常(スタック))

が確認され、セパレータ内部と容器間のガスリークが発 生していたことが容易に推測できた。これらの結果から、 大面積スタックIにおける短時間でのスタック電圧低下 の主要因は、セパレータ板端部の溶接部を中心とする腐 食による形状変形がガスリークの発生を招いたことにあ ると推察され、大型化に伴うセパレータ端部の構造なら び耐食性に問題があることが明らかとなった。

大面積スタック | で明らかになった課題を解決するた め、石川島播磨重工業(株)と当研究所は共同で、セパレ ータの信頼性向上対策として、図3-3-2(c)に示すよ うに、マスク板端部をプレス成形してダイヤフラムと一 体化した構造を、大面積スタックⅡに適用した。これに より、セパレータ端部の溶接箇所が減ると共に耐食処理 も容易となり、セパレータ製作の最終段階で、溶接部を 中心にアルミの部分溶射処理を施して耐食性向上を図る ことができるようになった。大型面積スタックⅡでは、 4,000時間を超える運転試験(運転圧力0.5MPa、電流密 度150mA/m<sup>2</sup>、燃料利用率80%)においてもセパレー タ板端部構造の健全性が確保されていることが確認され た。なお、本スタックは約2,500時間以降に反応抵抗増 大による電圧低下が大きくなった。(図3-3-6と図3-3-7 の「1991年10kWスタック」参照。2,500時間以降は負 荷電流を下げて運転したため図中でのデータは約2,500 時間までが示されている。)

大面積スタックⅡで開発したスタック化技術は、同セ

ルを102セル積層した上下51セルブロックからなる 100kW級スタックにおいて検証後、第2章で述べた 1,000kW級発電プラント用スタックとして採用された (図3-3-6と図3-3-7の「1993年100kWスタック」参照、 プラントの運転成果については2-2節参照)。

# 3-3-2 長寿命・低コストスタック技術への 挑戦

1,000kW 級発電プラントの開発により、大容量スタッ クの技術的な実現性は確認されたが、実用化に向けては、 スタックのさらなる長寿命化と低コスト化が課題となっ た。そのため、セパレータ構造の簡素化ならびに新型電 解質スタックの開発に着手した。

### (1) セパレータ構造の簡素化

3-3-1項で述べた多層構成セパレータの中央部(電極 対応部)は、センター板(1枚)上下流路板(2枚) 上下集電板(2枚)の計5層構造となっている。セパレ ータのコスト低減ならびに内部接触抵抗の低減による性 能の向上を考えた場合、このような多層構造から、部品 点数をいかに少なくするかが課題となる。さらに、 MCFCの性能劣化要因の一つとして3-2節にも示した様 に、セパレータ構成部材表面での腐食等による電解質の 損失が挙げられることから、大型スタックにおいては、 セパレータ内での電解質の濡れ面積の低減が、長寿命化 への一方策と考えられる<sup>(7)</sup>。この点からも積層部品点数 の削減は有効となる。 セパレータの層数を低減する方法としては、1集電板 とガス流路板とを一体化する方法、または2ガス流路板 とセンター板を一体化する方法が考えられる。いずれも 構造面では、セパレータ中央部を5層構造から3層構造 にすることが可能である。後者の方法(2)は、製造面 からは大型のプレス機等が必要となり難度が高くなるが、 構成金属部材間の接触抵抗や電極との接触面積確保の観 点からは、より効果的で有利であると期待できる。

これらのことから、実用化に向けたセパレータ構造と して、流路板とセンター板を一体化したセンター板プレ ス加工セパレータ(プレスセパレータ)の検討を石川島 播磨重工業(株)と共同で実施した。図3-3-4に、試作し たセパレータ板の断面構造の概要を示す。本構造ではガ ス流路部の電解質の濡れ面積を約50~60%低減できた。 本構造ではさらに、プレス成形による、量産化も容易と なり、コストダウンも期待できる。

センター板プレス加工セパレータの採用による長寿命 化の可能性を検討するため、0.5m<sup>2</sup>級のセパレータによ る14セルの10kW級スタックを試作し、5,000時間を超 える発電試験を行い、長時間運転特性の解明ならびに試 験終了後の分析を行った。その結果、運転初期に部材の 安定化によると思われる電圧上昇があり、その後は、発 電試験終了まで安定した電圧を維持した(図3-3-6と図 3-3-7の「1995年10kWスタック」参照)。その間の電圧 低下量は、約0.4%/1,000時間(約4mV/1,000時間)と 極めて小さく、解体後の分析によれば、セル内部での電 解質損失量が3-3-1項で述べた従来型のスタックに比較 して約1/2に低減していることがわかった。



図3-3-4 セパレータ断面構造の比較

以上の検討から、構成部材数を低減したセンター板プ レス加工セパレータが、実用化スタックの開発に対して 有効な手段であることが明らかとなった。

## (2) 新型電解質スタックへの挑戦

高い電圧を得るための加圧運転によってニッケル短絡 現象が顕在化するまで、MCFCの電解質には、Li/K系 が一般的に使用されていた。しかし、3-2節で述べたよ うに、Li/Na系が、高性能化・長寿化に有益であるとの 単セル研究結果をもとに、スタックへの適用が検討され た。当研究所では、まず(株)日立製作所との共同研究に おいて、スタックにLi/Na系電解質を適用し、その優位 性を確認した。さらに、(1)で述べたプレスセパレータ 技術と組合せた Li/Na 系電解質による新型スタックを中 部電力(株)ならびに石川島播磨重工業(株)との共同研究 において開発し、0.5m<sup>2</sup>のセルを14セル積層したスタッ クにおいて、10,000時間を超える連続運転を実証した (図3-3-6と図3-3-7の「1998年10kWスタック」参照)。 また、最大出力密度として、2.5kW/m<sup>2</sup>(従来の約1.5倍) を達成し、低コスト化に向けての対応が可能であること も明らかにした。

この技術をベースに、プレスセパレータ面積を実用規 模の1m<sup>2</sup>に拡大した1m<sup>2</sup>のセルを10セル積層による 10kW級スタックにより、連続発電時間10,000時間を達成した(MCFC研究組合からの受託分担研究)。その結果、電圧低下率はこれまで試験したスタックの中で最も小さい約0.3%/1,000時間となった(図3-3-6と図3-3-7の「2001年10kWスタック」参照)。以上により、スタックの大面積化を信頼性も含め実証した。

以上のスタック技術開発の変遷を、その後の現在までの展開を含めて図3-3-5に示した。

## 3-3-3 実用スタック化技術の確立に向けて

これまでの MCFC スタック技術の変遷を平均セル電 圧の経時変化として図3-3-6 にまとめて示した。大出力 化のためのスタック技術の基本となる大型積層セルの開 発では、本節に示したセパレータの改良はもとより、電 極や電解質板の着実な改良、高度化も図られており、 1m<sup>2</sup>級の大きさで安定性も含め10,000時間程度の連続発 電に耐え得る技術が確立されつつある。これらのスタッ クの電圧低下率についても図3-3-7 に示したように、実 用化のための目標とされる4万時間で10%の電圧低下に 対応する0.25%/1,000時間をほぼ達成できるレベルに到 達した。

現在、大出力スタック実現のための最後のハードルで



図3-3-5 MCFCスタック技術の変遷



図3-3-6 スタック寿命特性改善の履歴



図3-3-7 スタック電圧低下率の改善

ある高積層化技術を確立するため、300kW級スタック の開発が国、メーカー、ユーザーが一体となり進められ ている。このハードルを一日も早く乗り越え、さらによ り大出力のスタックを実現するため、当研究所において も、新たなブレークスルーを求め、高積層スタック化技 術の開発に注力して行く予定である。

# コラム4:炭素析出とその抑制

MCFCの運転において最も留意すべき点の一つ に炭素析出がある。炭素析出は、発電システム内 のガス精製触媒や改質触媒、熱変換器、電池のア ノード表面などに、固体の炭素が析出する現象で あり、数100 以上で加湿量の少ない燃料ガスを用 いた際に特に発生し易いことが知られている。炭 素析出はガスの配管や熱交換器などの比較的流路 断面積の小さい箇所を閉塞させ、システム運転停 止や有効燃料の浪費による発電効率の低下を引き 起こすため、抑制・回避しなければならない。こ の炭素析出発生条件は燃料ガス組成や圧力、温度 条件によって変化する。特に高圧運転条件下では 熱力学的に析出し易い条件となることも知られて いる。

MCFCの燃料ガスとして、天然ガスを想定した 場合、H<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>O、CO<sub>2</sub>、COおよびCH<sub>4</sub>が供給され る。このためアノード流路内では以下のシフト反 応が起こる。

$$H_2O + CO = H_2 + CO_2$$
 (1)  
また、 $H_2$ とCOからメタネーション生成反応が起

こる。

$3H_2 + CO = CH_4 + H_2O$	(2)
炭素析出は Boudouard 反応	

$$CO_2$$
 (3)

によって進行すると考えられている。

2CO = C +

これらの反応と実際の炭素析出条件との関係を 明らかにするため、0.5MPaの条件下において電極 の主要材料であるニッケルを用いてその粉末によ る炭素析出試験を行った。数種類のガス組成によ る析出結果と熱力学平衡計算による析出の境界線 を、ガス中のC、H、Oの元素比に基づいて**三元図** に表した。図中では二平衡((1)式と(3)式が平 衡に達している場合)または三平衡((1)~(3)式 がすべて平衡に達している場合)を仮定した場合 の析出境界を示している。

これまでの各種試験によればシフト反応に対し てはほぼ平衡組成になっていたが、メタネーショ ン反応に対しては平衡に達しておらず、図からも 二平衡条件で炭素析出の有無が決まることが明ら かになった。

この三元図を基に炭素析出を防止するための条件を考慮すると、水蒸気の添加によって図中H<sub>2</sub>O に近づけるか、またはアノードガスのリサイクル によってCO<sub>3</sub><sup>2-</sup>へと近づけ、燃料ガス組成を炭素非 析出領域へと変更・移動させる方法が考えられる。 天然ガスを燃料とする場合には、H<sub>2</sub>濃度が高いた め、組成は概ね三元図中の"H"側に位置すること になる。したがって炭素析出防止には水蒸気添加 量を制御する方が簡便となる。例えば、300kW級 小型発電システムの運転条件では水蒸気濃度とし て28%以上(スチームカーボン比(S/C)=3) 1.2MPaで動作する高性能モジュールシステムの運 転条件では水蒸気添加量として42%以上(S/C=4.4) が必要であると計算できる。同様に改質器につい ても必要水蒸気量の計算が可能となる。



# 天然ガスからバイ オ・廃棄物・石炭ガ スへ(適用拡大を目 指す応用技術)

第

天然ガス改質燃料が水素主体であるのに対し、バイオ・廃棄物・石炭などのガス化 ガスは一酸化炭素が主体となる。MCFCの適用性を拡げるため、一酸化炭素の濃度が 異なるこれらの模擬ガスにより、あらゆる一酸化炭素濃度範囲で電池が安定に発電で きることを実証した。また、これらのガスに含まれる硫化水素やハロゲンなどの微量 の不純物による電池性能への影響についても、詳細にそのメカニズムを解明し、目標 レベルを達成するガス精製技術を開発した。さらに実際の電池特性や運転限界を反映 したシステム解析によって、より現実的なシステム構築を進めている。 第4章 天然ガスからバイオ・廃棄物・石炭ガスへ(適用拡大を目指す応用技術) 目次

横須賀研究所 エネルギー化学部 主任研究員 吉葉 史彦 横須賀研究所 エネルギー化学部 主任研究員 河瀬 誠 横須賀研究所 エネルギー化学部 上席研究員 白井 裕三

4	- 1	低カロリー燃料の適用	59
4	- 2	供給ガス中不純物成分の影響	63
4	- 3	高性能ガス精製技術	68
4	- 4	実電池特性に基づく発電システムの構築	72
٦ť	ラム 5	: MCFC <b>による炭酸ガス濃縮</b>	77

吉葉 史彦(8ページに掲載) (4-1、4-4執筆)



河瀬 誠(1993年入所) これまでMCFCに関する研究に携わり、燃料として石炭ガス化燃料を用いた場合の電池 性能に対する不純物の影響評価を中心に研究 を行っている。さらに、燃料電池の高出力化 のため、高性能な電極の開発に取り組んでい る。今後も、引き続きガス化複合MCFC発 電の実用化に向けて不純物の影響評価、高性 能な電極開発の研究を進める。 (4-2およびコラム5執筆)



白井 裕三(1983年入所) これまで、石炭ガス化乾式ガス精製におけ る乾式脱硫に携わってきた。現在は、乾式ガ ス精製技術の実用化を目指すと共に、石炭の 高度燃焼技術、高品位化技術に関する研究に 力を入れて実施している。これからは石炭の 効率的利用の観点から幅広く研究を進めたい と考えている。

(4-3執筆)

# 4-1 低カロリー燃料の適用

# 4-1-1 MCFC の燃料多様性

高温で作動する MCFC には、高効率発電が可能なこ とに加えて、燃料の多様性という大きな特徴がある。高 温作動であるため、COガスによる被毒性を有する白金 等の触媒を、発電反応における触媒として必要としない。 したがって、天然ガス改質ガスのような水素を主成分と する燃料ガスだけでなく、バイオマスガス化ガス、廃棄 物ガス化ガス、石炭ガス化ガス等の COを主成分とし、 天然ガス改質ガスに比較して一般的に低カロリーなガス も、MCFCの燃料として適用可能となる。COを主成分 とする燃料ガスの一例として、石炭ガス化ガス、廃棄物 ガス化ガスの組成の一例を天然ガス改質ガス組成と比較 して表4-1-1に示す。天然ガス改質ガス組成はH<sub>2</sub>をそ の主成分とするのに対し、廃棄物や石炭のガス化ガスで はCOが主成分となっていることが分かる。

また、石炭ガス化ガスや廃棄物ガス化ガスを MCFC に供給するシステムには、もう一つの大きな特徴があ る。それは MCFC における燃料利用率の高さである。 天然ガスを燃料とした MCFC 発電システムの場合、天 然ガスに水蒸気を添加し、水蒸気改質を行って H<sub>2</sub>を主 成分とする燃料ガスを生成する。この改質反応は吸熱 反応であり、改質された H<sub>2</sub>を主成分とする燃料は、 80%程度が MCFC での発電反応で消費され、残りの 20 %程度は、燃料の水蒸気改質反応の熱源として使わ

		天然ガス	石炭ガス化ガス		廃棄物ガス化ガス (都市ゴミ)*		
		水蒸気 改質ガス	空気 吹き	酸素 吹き	空気 吹き	酸素 吹き	
СО		9.2	28	65	16	49	
H <sub>2</sub>		50.0	13	25.2	16	29	
CO <sub>2</sub>		6.1	2.5	0.1	11	16	
H <sub>2</sub> O	%	34.1	1.5	0.1	-	-	
CH₄		0.5	0	0	2	< 0.1	
$N_2$		0.01	56	9.4	53	5.6	
発熱量 kcal/m <sup>3</sup> N		1,849	1,213	2,729	1,193	2,222	

表4-1-1 各種燃料ガス組成の違い(例)

\* 乾基準

れる。すなわち燃料電池から改質器への一種の燃料エ ネルギーの再循環が行われており、改質用熱源確保の ため、MCFCにおける燃料利用率には上限がある。こ れに対して、石炭を燃料とした場合、石炭をガス化す る過程で必要とされる熱は、石炭自身を燃焼させるこ とにより供給されるため、MCFCからの燃料エネルギ ーの再循環は行われない。したがって、MCFCでの燃 料利用率に上限は無く、むしろ高い熱効率を得るため には、ガス化されたガスのほとんどをMCFCにおける 発電で消費することが望ましい。すなわち、燃料利用 率を高く設定する必要がある<sup>(1)-(6)</sup>。

このような観点をもとに、本節ではCO濃度の高い燃料ガスを用いた場合の単セル、スタックの性能について述べる。

# 4-1-2 小型単セルによる多様な燃料への適応性検証

MCFCが多様な燃料に対応できることを確認するた め、まず電極面積100cm<sup>2</sup>の小型単セルによる試験を燃 料ガス条件を変えて行った。MCFCがCO濃度の異なる 各種燃料ガスでも発電できるためには、シフト反応が平 衡に達する速度が発電反応に対して十分速く、電極反応 によって消費されたH<sub>2</sub>分は電池内で速やかにシフト反 応によってCOから転化され、補われる必要がある<sup>(7)</sup>。 低H<sub>2</sub>高CO濃度ガスでのシフト反応の転化速度を検証 するため、各ガス条件での電池出口組成を検討した結果、 常圧下でのH<sub>2</sub>濃度実測値は、平衡組成に対し若干のず れが認められる(図4-1-1(a))ものの、0.3MPa運転 条件下でのH<sub>2</sub>濃度は、ほぼ平衡組成に達しており(図 4-1-1(b))加圧条件下では上記ガスにおいても十分 なシフト反応に関する転化速度が得られることが明らか となった。

各燃料ガスによるセル電圧の圧力依存性に関しては、 空気吹き石炭ガス条件では特に、常圧、アノードガス (燃料ガス)リサイクル率50%条件下において電池性能 の低下が認められたが、他の低H<sub>2</sub>高CO濃度条件に関 しては、天然ガス条件に比べて一律に絶対値は下がるも



図4-1-1 MCFC内部におけるシフト反応平衡状態(アノード出口水素ガス濃度の実測値と計算値との比較)

のの、ほぼ同様の圧力依存性を示した。

性能の安定性に関しては、燃料ガスを酸素吹き石炭ガ ス条件とし、酸化剤ガス側をAir/CO<sub>2</sub>として、これに加 湿した場合と加湿しない場合について試験した。500時 間の連続運転では、いずれの酸化剤ガス条件下において もアノード出口組成に経時的変化は認められないが、電 池電圧は酸化剤ドライガス条件下では経時的に安定しな かった。これに対しAir/CO<sub>2</sub>に10%程度の水蒸気を加え た酸化剤ウェットガス条件下では500時間安定に電圧は 推移した。

# 4-1-3 高濃度 CO 燃料によるスタック発電特性

石炭ガス化 MCFC 発電システムや廃棄物ガス化 MCFC 発電システムを実用化させるためには、単セル による検証ばかりでなく、内部に温度分布や電流密度分 布を持つスタックによる検証が必要である。上述したよ うに1 COを多く含む燃料ガスを用いて、2 高い燃料利 用率条件下における、実用規模のサイズを有する MCFC スタックの発電特性を明確化することがキーポ イントとなる。

スタックに石炭ガス化ガス組成等を模擬した燃料を供 給するためには、高濃度のCOを多量に連続的に生成す る必要がある。そのためH<sub>2</sub>とCO<sub>2</sub>ガスからの逆シフト 反応と $CO_2$ ガス分離膜を利用し、高濃度のCOガスを連 続的に生成するCO燃料供給装置を設置し、CO燃料源 として用いた。本装置で連続的に生成された燃料のガス 組成は $H_2/CO/CO_2/N_2/CH_4=0/93.3/9.67/0/0$ であった。

本供給装置を用いて、10kW級スタック(電極面積 1m<sup>2</sup>セル10枚)により燃料ガス組成を変えて発電試験 した。本試験の特徴は、燃料ガスの組成が水素リッチな ガスからCOリッチなガスまで、燃料中の可燃成分の組 成を変更して試験したことである。そのため、燃料中の H<sub>2</sub>対COの比率を、CO/(CO + H<sub>2</sub>)として表した。こ の組成比率は燃料利用率と共に本試験における重要なパ ラメータである。試験を実施したガス条件を図4-1-2に プロット点として示す。燃料利用率の設定は最高で95% に達しており、また、CO/(H<sub>2</sub>+CO)比は最大で1、即 ち、燃料としてはCOのみ(加湿有り)を供給した場合 でも安定して発電することができた。

図4-1-2に示したそれぞれの運転試験条件では、設備 運転の都合上、燃料ガス中におけるCO<sub>2</sub>及びH<sub>2</sub>Oの濃 度が異なっている。そのため、CO/(CO+H<sub>2</sub>)比をパラ メータとしてスタック性能の比較を行う場合には、燃料 種以外のガスとして供給されたCO<sub>2</sub>及びH<sub>2</sub>Oが発電性 能に与える影響について補正する必要がある。そこで、 スタックの平均セル電圧について、スタック性能と温度 分布に関する数値解析により、CO<sub>2</sub>無供給(CO<sub>2</sub>フリー) で50%水蒸気加湿の条件への電圧補正を行った。また、



図4-1-2 発電試験を実施したときのCO(CO+H2)比と燃料利用率

燃料利用率もしくはCO/(H₂+CO)比に対するデータ取 得点はばらついているので、アノードガスリサイクル率 毎に電圧を補間した。

図4-1-3に天然ガス改質ガス組成、及び、石炭ガス化 ガス組成を模擬した燃料を供給した場合について、スタ ック平均電圧の燃料利用率依存性を示す。石炭ガス化 MCFC発電システムでは、アノードガスリサイクルを行 わないシステム、及び、アノードガスリサイクルを多量 に行うシステムが想定されるため(4-4-1項参照)、本図 にはこれらの2つのケースについての電圧を示した<sup>(2)(8)</sup>。 両ケースともその燃料利用率特性は、天然ガス組成の場 合の燃料利用率特性と同様の傾向を示している。これら の結果から、石炭ガス化 MCFC 発電システムにおいて も、天然ガスシステムの場合と同様に本スタックが適用 可能であることが分かった。

次に、燃料ガス組成を大きく変化させた場合のスタッ ク発電性能について示す。図4-1-4は、燃料利用率が 75%(天然ガスシステムにおける燃料利用率に対応)の



図4-1-3 天然ガス改質ガス及び石炭ガス化ガスを模擬した燃料によるスタック発電特性 (平均セル電圧の燃料利用率依存性)



図4-1-4 CO/(CO+H<sub>2</sub>)比を変更した場合のスタック発電特性

場合、及び、90%(石炭ガス化システムにおける燃料利 用率に対応)の場合について、燃料ガス中のCO/ (H<sub>2</sub>+CO)比の変更に伴うスタック発電特性である。こ こでは、燃料ガス組成のスタック発電特性に与える影響 に着目するため、アノードガスリサイクルを行っていな いケースについて示した。CO/(H<sub>2</sub>+CO)比が0~1の 範囲において、いずれの両燃料利用率でも、同様の電圧 変化を示している。特に、CO/(H<sub>2</sub>+CO)比が1の場合 には燃料としてH<sub>2</sub>を供給していないが、この場合でも スタックは安定した挙動を示すことが分かった。

# 4-1-4 スタック内部シフト反応と温度分布 に関する解析

スタックに石炭ガス化ガスのようなCO濃度の高い燃 料ガスを供給した場合の電池内部におけるシフト反応に ついて、単セルと同様に調べた。シフト反応はH<sub>2</sub>を生 成する時に発熱反応となるため、CO濃度の高いガスを 燃料として供給した場合、スタック内部で大きな発熱が 生じ、内部温度分布に影響を与えることが予想される。 ここでは、スタックにおけるアノード出口ガス組成のシ フト平衡とスタック内部の温度分布に関する解析を行っ た。

図4-1-5 にスタック出口ガスの水素濃度について、実 測値と625 におけるシフト反応平衡濃度の関係を示す。 プロットは、CO/(H<sub>2</sub>+CO)組成比を0~1まで変更し た燃料ガス組成に対応している。アノード出口H<sub>2</sub>ガス



図4-1-5 アノード出口水素濃度実測値の平衡計算 値との比較

濃度の実測値はいずれもシフト反応に関して平衡に達し ていることが分かる。特にCO/(H<sub>2</sub>+CO)=1の場合は、 燃料ガスとしてCOのみ(加湿あり)を供給しており、 この場合でも、シフト反応が平衡に達していることが分 かった。また、図4-1-6に燃料中のCO/(H<sub>2</sub>+CO)組成 比を0~1まで変更した場合のスタック中心温度を、ス タック内部でのシフト平衡を仮定して計算した温度と比 較して示す。シフト反応によるスタック中心温度実測値 の上昇幅は、スタック内部温度分布解析結果と概ね一致 しており、シフト反応がスタック内部で平衡に達してい ることが、スタック内部温度分布の観点からも明らかと なった<sup>(9X10)</sup>。





# 4-2 供給ガス中不純物成分の影響

MCFCは、高温(約650)で作動することからCO による電極反応触媒の被毒はなく、COを多量に含む石 炭ガス化ガスや、再生可能エネルギーとして注目されて いる廃棄物ガス化ガス、バイオマスガス等を燃料ガスと して用いることができると共に高効率発電が可能である。 しかし、これら燃料ガスは、天然ガス改質ガス燃料に比 べ、多種類の不純物(硫黄化合物、ハロゲン化合物、窒 素化合物等)を多量に含んでおり、それらの影響は個々 の不純物によって異なっている。また、これらの不純物 はCO<sub>2</sub>リサイクルに伴い酸化剤ガスに混入することにな る。

ここでは、それらの燃料中の代表的な不純物である H<sub>2</sub>S、HCI、HF、NH<sub>3</sub>および酸化剤ガス中の不純物であるNOx、SO<sub>2</sub>のセル性能への影響について、小型単セル 試験結果をもとに報告する。

## 4-2-1 燃料ガス中不純物の影響

### (1) H<sub>2</sub>Sの影響

**図**4-2-1 に高H<sub>2</sub>濃度の燃料(H<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O=64/16/20) での電池電圧の経時変化、**図**4-2-2 に高CO濃度の燃料 (H<sub>2</sub>/CO/N<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O=10/26/13/21/30)での電池電圧 の経時変化を示す。**図**4-2-1より、H<sub>2</sub>S濃度が高いほど 電圧への影響が大きいことがわかる。また、電池電圧低



図4-2-1 高H<sub>2</sub>濃度燃料におけるH<sub>2</sub>Sの影響



図4-2-2 高CO濃度燃料におけるH<sub>2</sub>Sの影響

下のパターンは、H<sub>2</sub>S添加直後に急激な電圧低下があり、 添加約1,000時間までは電圧低下率が大きいものの、時 間とともに電圧低下率は減少していることがわかる。

さらに、図4-2-1と図4-2-2を比較すると、図4-2-2 ではH<sub>2</sub>S: 1 ppmの添加により約20mV電圧が低下し ており、H<sub>2</sub>Sの影響が大きいことがわかる。

これは、図4-2-3に示すように添加したH<sub>2</sub>Sの一部が アノード(Ni)表面に化学吸着しNi触媒機能の低下を 引き起こすことが原因であり<sup>(1)(2)</sup>、そのため、COから H<sub>2</sub>への転化反応(シフト反応)が阻害され、発電反応 の主反応物質であるH<sub>2</sub>が欠乏し電池性能が低下する。 したがって、CO濃度の高い燃料ほどH<sub>2</sub>Sの影響は大き くなり、高H<sub>2</sub>燃料でのH<sub>2</sub>S許容濃度は5 ppm程度であ るが、高CO濃度燃料では1 ppm以下となる。

また、運転圧力が高いほど燃料が電池内に滞留する時間が長くなるため、シフト反応の反応速度の低下を補う ことができ、H<sub>2</sub>Sの影響が小さくなる結果となった。 (図4-2-4)

### (2) **ハロゲン化合物 (HCI、HF) の影響**

高CO濃度燃料にHCI: 10ppm添加した場合、HF: 10ppm添加した場合の両者において、不純物による発 電性能への影響は認められなかった。<sup>(3)</sup>しかし、図4-2-5の電池内でのHCI、HFの挙動および図4-2-6のCI、F の物質収支に示すように、HCIおよびHFは溶融炭酸塩 と反応し塩化物イオン(CI<sup>-</sup>)およびフッ化物イオン



図4-2-4 H<sub>2</sub>Sの影響と運転圧力の関係

(F・)として電解質中に蓄積されることが、試験後の解 体分析により明らかとなり、炭酸塩ロス(炭酸イオンの 減少)が電池寿命に影響を及ぼすことになる。加えて、 塩化物イオンは運転圧力が低い場合、NaClまたはKCl として蒸発するため電解質ロス(電解質量の減少)も寿 命に影響を及ぼす。さらに、電解質中のフッ化物イオン 濃度が高い場合、カソード集電板の腐食が激しくなるこ とから、長時間および高濃度HFでの運転では、腐食お よびそれに伴う電解質ロスが電池寿命に対して問題とな る。以上のような背景から運転時間40,000時間達成する ためには燃料中のHClおよびHF濃度を1 ppm以下に 抑える必要がある。



図4-2-3 電池内でのH2Sの挙動



図4-2-5 電池内でのHCI、HFの挙動



図4-2-6 CI、Fの物質収支

### (3) NH<sub>3</sub>の影響

高CO濃度の燃料にNH<sub>3</sub>: 300ppm 添加した場合、電 池性能への影響は確認できず、添加したNH<sub>3</sub>のほぼ全 量が燃料排ガス中に排出される。また、NH<sub>3</sub>: 500ppm を含んだ高H<sub>2</sub>濃度の燃料による発電試験においても電 池性能に影響がないことを確認した。<sup>(4)</sup>

# 4-2-2 酸化剤ガス中不純物の影響

燃料排ガス中のH<sub>2</sub>SおよびNH<sub>3</sub>は、炭酸ガスのリサイ クルに伴い触媒燃焼器で酸化され硫黄酸化物(SO<sub>2</sub>)ま たは窒素酸化物(NOx)となりカソードに送り込まれ る。例えば、燃料中にアンモニアが約300ppm含まれて いる場合、炭酸ガスリサイクルによって酸化剤ガスに送 り込まれる窒素酸化物濃度は約20 ~ 50ppm 程度となる。 また、NOx、SO<sub>2</sub>を多量に含むごみ焼却場・火力発電 所・製鉄所などの排ガスを酸化剤ガスに用いることも考 えられる。

### (1) NOx の影響

図4-2-7 に示す NOx: 50ppm 添加した場合の電圧経 時変化より、NOx 添加により内部抵抗が増加し、電池 電圧は低下することがわかる。しかしながら、その内部 抵抗の増加は数十時間で飽和するため、電池性能の低下 は抑えられる。



図4-2-7 NOx:50ppm添加した場合の電圧経時変 化(図4-2-1の運転条件と同様)

これは、図4-2-8 に示すように、継続的にNOx はカ ソード側から電解質に溶解するが、アノードにおいて燃 料ガス中のH<sub>2</sub>とNO<sub>2</sub>・またはNO<sub>3</sub>・が反応し、N<sub>2</sub>として アノード排ガス中に放出されるため、電解質中にはほと んどNO<sub>3</sub>・またはNO<sub>2</sub>・は蓄積されないためと考えられ る。したがって内部抵抗増加原因となる物質の生成も鈍 化し、結果的に電池性能の低下はほとんど起こらない。 またこの結果は、供給されたNOx がN<sub>2</sub>に還元されるこ とを示しており、MCFCのように燃料ガスと酸化剤ガス が電解質板によって仕切られている機器は脱硝機能を持 ち合わせていることを示している。酸化剤中 NOx 濃度 が100ppm 以上になると内部抵抗の増加に加え反応抵抗 も増加も大きくなるため、NOx の許容濃度は50ppm 程 度となる。

### (2) SO<sub>2</sub>の影響

SO<sub>2</sub>の添加により、図4-2-9に示すようにカソード流路部の腐食が進行しやすくなるため、通常のカソード流



図4-2-8 電池内でのNOxの挙動 ([]は添加したNOx量を100とした場合の窒素化合物の収支)



図4-2-9 SO<sub>2</sub>によるカソード流路部(SUS316L)の腐食

路部材に用いられているステンレス鋼(SUS316L)より も耐腐食性の高い材料(例:インコロイ825)を用いる 必要がある。図4-2-10にインコロイ825のカソード流 路部材を用いた場合の高H2濃度燃料における電圧経時 変化を示す。電圧の経時変化はH2S添加の場合と類似し た傾向にあり、SO2添加初期に電圧の低下は大きいが時 間の経過にしたがって小さくなる。

また、SO<sub>2</sub>の影響は高H<sub>2</sub>濃度燃料よりも高CO濃度燃料での影響がかなり大きくなるため、高CO濃度燃料でのSO<sub>2</sub>許容濃度は1 ppm以下となる。このように酸化剤ガス中にSO<sub>2</sub>を加えた場合でも、燃料ガス組成によって、影響度に違いが現れるのは、図4-2-11の機構に示すようにアノード側にH<sub>2</sub>Sの状態で放出され、H<sub>2</sub>Sの影響も加わるためである。

# 4-2-3 複数不純物共存条件による電池性能への影響

H<sub>2</sub>S、HCI、HF、NH<sub>3</sub>が共存するような条件で電池性 能への影響を調べた。まず、高CO濃度の燃料にH<sub>2</sub>S: 1 ppmを添加し、320時間後にNH<sub>3</sub>: 300ppm, HF: 10ppm, HCI: 5 ppmを同時に追加した場合の電圧経 時変化を図4-2-12に示す。H<sub>2</sub>Sの添加によって図4-2-2 と同様に電池電圧は約25mV低下したが、NH<sub>3</sub>、HF、 HCIの添加によっては多少電圧に変動が見られるものの 大きな変化は見られていない。

図 4-2-13では、H<sub>2</sub>S、HCI、HF、NH<sub>3</sub>に加え NOx: 20ppm、SO<sub>2</sub>: 1 ppm を添加した場合の電圧の挙動を



図4-2-10 インコロイ825のカソード流路部材を用 いた場合の電圧経時変化



図4-2-11 電池内でのSO2の挙動



図4-2-12 H<sub>2</sub>S、HCI、HF、NH<sub>3</sub>の複合影響 (図4-2-2の運転条件と同様)

示す。個々の不純物の影響は現れているが、複数の不純 物が含まれることによる発電性能への複合的な影響は見 られなかった。

これまでの結果から、各不純物の影響と許容濃度は表 4-2-1に示すようにまとめられ、これら不純物の複数種 が供給ガスに含まれる場合は、個々の不純物の影響の加 算として全体への影響を評価できる。

以上、当研究所を中心として実施した石炭ガス化燃料 中の各種の不純物による電池特性への影響評価について 述べた。今後はバイオ・廃棄物・石炭ガスの実ガスを用 い不純物の影響について明らかとしていく必要がある。





表4-2-1 各不純物の影響と許容濃度

ティキャク	星》 绝望	許容濃度(ppm)			
个船物	など音	高H <sub>2</sub> 濃度燃料	高CO濃度燃料		
$H_2S$	シフト反応の反応速度低下	5	1		
HCI	炭酸塩ロス	1			
HF	炭酸塩ロス・腐食	1			
$NH_3$	なし(500ppm以上のデータなし)	500			
SO <sub>2</sub>	腐食・シフト反応の反応速度低下	3 1以下			
NOx	内部抵抗の増加	50			

# 4-3 高性能ガス精製技術

# 4-3-1 高性能ガス精製技術の概要

バイオマス・廃棄物・石炭ガス化ガスには、様々な不 純物が含まれており、前節ではこれらの不純物による電 池性能への影響について述べた。これらのガスを MCFCに適用するためには、性能を低下させる成分を 必要なレベルまで除去するガス精製技術の開発が必要で ある。

除去成分としては、ばいじん、硫黄化合物(H<sub>2</sub>S、 COS)、ハロゲン化物(HCI、HF)が挙げられ、当研究 所では、MCFC性能への影響度を考慮しつつ、これら の当面の目標としてばいじん濃度1 mg/m<sup>3</sup><sub>N</sub>以下、硫黄 化合物およびハロゲン化物濃度1 ppm以下を設定し、 ガス精製技術の開発を進めてきた。これらの目標値は、 開発が進められている石炭ガス化複合発電(IGCC)用 のガス精製目標に比較して、さらに高いレベルのものと なっている。

このガス精製技術としては、ガスを室温レベルまで冷 却して除去する湿式ガス精製技術と高温のまま除去する 乾式ガス精製技術が挙げられる。湿式ガス精製技術では、 ばいじん除去後、アンモニアおよびハロゲン化物(HCl、 HF)などが水スクラバーで除去され、さらにCOS変換 器により湿式脱硫装置では除去し難いCOSがH<sub>2</sub>Sへ転



図 4-3-1 ガス精製プロセス

換される。最後にMDEA(メチルジエタノールアミン) などの吸収液を用いた湿式脱硫装置でH<sub>2</sub>Sを除去する。 また、湿式脱硫装置では、硫黄化合物を1ppm以下ま で除去できないため、酸化亜鉛等の乾式脱硫剤によりさ らに精密に硫黄分を除去する必要がある。一方、乾式ガ ス精製技術においては、高温のまま、同一温度でばいじ ん、硫黄化合物、ハロゲン化物を除去する。このため、 熱損失が極めて少なく、さらに熱交換器など機器がなく、 湿式ガス精製に比べ、プロセスも簡素化にできる利点を 有する。しかし、本プロセスはMCFC用も含めて現状 において実用化された例はない。

当研究所では、このように湿式ガス精製技術に比べて、 メリットの多い乾式ガス精製技術をMCFCに適用する ため、400~450 において使用する高性能乾式ガス精 製技術の開発を進めてきた。

# 4-3-2 セラミックフィルター集じん技術

高温でかつ硫黄化合物やハロゲン化物が含まれる腐食 性の高い雰囲気でばいじんを1 mg/m<sup>3</sup>N以下まで精密に 除去する技術として、セラミックフィルター集じん技術 の開発を進めた。この技術においては、図4-3-2に示す ように石炭ガス化ガスが、フィルターの外面から内面へ 通過する間に、ばいじんがフィルター外面で除去され、 ばいじん層が形成される。その後は、この層でばいじん



図 4-3-2 セラミックフィルター集じん法

が除去され、次第に層が厚くなり、圧力損失が設定の値 に達した時点で、クリーンなガスを内面側に噴射し、ガ スを逆向きに流し、ばいじん層を払い落とすこと(逆洗) により、繰り返し使用する。

このセラミックフィルターにおいては、腐食しないこ と、逆洗ガスとの温度差による熱衝撃に強いこと、圧力 損失が小さいことおよびフィルター内部へのばいじんの 侵入を防止できることが必要となる。

当研究所はSiCを用い、外面の気孔を微細化すると共 に、ばいじんの除去に関与しない内部の気孔を大きくし た二層構造のフィルターを開発した(図4-3-3)。この フィルターは当研究所に設置した2トン/日空気吹き噴 流床石炭ガス化装置に対応した乾式クリーンアップ装置 により性能が評価され、さらに、勿来200トン/日空気



図4-3-3 セラミックフィルターエレメント 外径70mm、内径40mm、長さ1000mm

吹き噴流床石炭ガス化パイロットプラントにおいて検証 され実証段階にある。

## 4-3-3 乾式脱硫技術

金属酸化物を用いた脱硫剤に石炭ガス中の硫黄化合物 (H<sub>2</sub>S、COS)を吸収させて除去する。さらに使用後の 脱硫剤を再生して使用することを前提としている。この 脱硫剤を開発するに当たっては、以下の事項を考慮して 検討を進める必要がある。

1炭素析出による脱硫剤の崩壊が生じない。

2 目標濃度まで除去できる。

3再生でき、長期間使用できる。

図4-3-4 に脱硫剤を用いる当研究所が開発した固定床 脱硫システムを示す。このシステムでは、3 塔を有し、 還元、脱硫および再生の3 工程を順次切り換えることに より連続的に脱硫を行う。また、硫黄分を吸収した脱硫 剤は酸素と反応させ、硫黄分を二酸化硫黄(SO<sub>2</sub>)とし て放出させて再生される。この再生反応は発熱反応であ るため、脱硫剤温度が耐熱温度(800)を超えないよ うに、硫黄回収後の再生ガスをリサイクルして、酸素濃 度が1.5%程度となるように空気を希釈して再生に用い る。

当研究所では、石炭ガス化複合発電用に硫黄化合物を 100ppm以下まで除去できる酸化鉄系ハニカム脱硫剤を 開発し、その性能を勿来の200トン/日石炭ガス化複合 発電パイロットプラントおけるバイパス試験(全ガス量 の1/10)で検証した。

さらに高性能化し、MCFCにも石炭ガスを利用できるように、硫黄化合物を1ppm程度まで低減できる亜鉛



図4-3-4 固定床脱硫システム

フェライト脱硫剤の開発を進めた。

1ppm以下と極低濃度までの除去を前提とする場合に は、鉄成分では達成が困難であり、亜鉛成分の添加が不 可欠である。また、再生の容易さからは鉄成分を含んで いた方が好ましい。そこで1ppm以下まで除去できる亜 鉛成分と再生が容易な鉄成分とを組み合わせた亜鉛フェ ライトを用いたハニカム脱硫剤(図4-3-5)を調製し、 性能評価を実施した。この結果、図3-4-6に示すように 450 において酸化鉄では除去できなかった1ppm以下 までの除去が可能であることを明らかにした。さらに脱 硫/再生繰り返し試験を実施し、硫黄分吸収容量の急激 な低下はなく、長期的に利用できる見通しを得ている。

## 4-3-4 脱ハロゲン技術

使用する吸収剤は石炭ガス中のHCIとHFを同時に除 去する必要がある。図4-3-7に各物質の化学平衡におけ る除去の可能性を示す。この結果からはHCIおよびHF を同時に1 ppm以下まで除去できる成分としてナトリ ウム系の物質が挙げられる。

当所は、活性の高いナトリウム化合物としてアルミン 酸ナトリウム(NaAIO<sub>2</sub>)を見出した。これに活性アル ミナを添加することにより多孔質な吸収剤を調製し、性 能評価を行った結果、図4-3-8に示すように、炭酸ナト リウムのような工業原料をそのまま使用するのに比べ、 硫黄化合物共存下で高い性能を有していることを明らか にした。また、反応後ナトリウム成分は再生し難い塩化 物やフッ化物となるため、再生・再利用法が重要な課題 となる。そこで、アルミニウム成分のみを回収する方法 について検討し、アルミニウム成分をリサイクルできる 調製法を考案した。



図4-3-5 亜鉛フェライトハニカム脱硫剤 ZnFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>:20wt%






図 4-3-7 各種金属酸化物の HCI、 HF 平衡濃度



図4-3-8 NaAIO2吸収剤のHCI除去性能

現在、ナトリウム成分を再利用するための再生法および 吸収剤の粒径や形状を調節可能な調製法について検討を 進めている。

# 4-3-5 発電効率に及ぼすガス精製システム の影響

石炭ガス化炉3方式に湿式ガス精製技術、乾式脱硫技

術を組み合わせた場合の MCFC の効率計算を実施した。 この結果、表4-3-1 に示すように、すべての方式におい て50%(HHV基準)以上の発電効率が得られることが 判明した。さらに乾式法を採用した場合には、ガス化方 式による差異はなくなり、53%と最も高い発電効率が 得られることが判明した<sup>(5)</sup>。

	空気 ドライフィ- 発電端効率 (%)	吹き - ドガス化炉 送電端効率 (%)	酸素 ドライフィ- 発電端効率 (%)	吹き - ドガス化炉 送電端効率 (%)	酸素 スラリーフィ 発電端効率 (%)	吹き ードガス化炉 送電端効率 (%)
湿式ガス精製 MDEA法	57.2	52.5	61.4	53.1	58.9	51.4
乾式ガス精製 ZnFe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + NaAlO <sub>2</sub>	58.3	53.3	61.9	53.3	60.6	53.1

表4-3-1 石炭ガス化MCFC発電の発電効率推算結果

# 4・4 実電池特性に基づくシステムの構築

MCFC発電システムの構成は様々な研究機関や MCFCメーカーにより多数提案されている<sup>(1)-(5)</sup>。しか しながら、多くのシステムに関する熱効率解析結果をみ ると、実際のMCFCの性能や発電可能な条件について、 必ずしも十分に考慮したとは言えないものが多い。この ことは、システム特性を解析するにあたり、最も基本と なる実電池の発電可能な条件が明確化されていないこと に起因しているものと考えられる。これらを考慮しない システム設計では、実際の発電は不可能であり、MCFC の適用を拡大・展開して行くことは困難である。

当研究所は従来から、単セルやスタックにおける実電 池発電特性や運転限界を実験的に把握してきており、そ れらをシステム設計やシステム性能解析に結びつけるこ とが可能である。本章では、まず多様な燃料を供給した 場合のシステムの一例として石炭ガスを対象に実電池の 発電可能な条件を反映したシステム性能解析を行い、よ り現実的な石炭ガス化 MCFC 複合電システムの特性を 示す。また、もう一例として、天然ガス燃料に焦点を当 て、幅広い負荷領域にて運転が可能な MCFC 発電シス テムの特性解析を実施し、将来的な新しい適用形態につ いて示す。

# 4-4-1 発電システム構成に対するガス中不 純物(H<sub>2</sub>S)の影響度

MCFCに、バイオマス、廃棄物、石炭などの多様な ガス化ガス燃料を適用するためには、これらのガスに対 する MCFC の耐久性検証のみならず、電池部分におけ るガス組成条件等が発電に適切となるようなプラントシ ステムを構成することが重要である。これらのガス中に は4-2節で述べたように多くの不純物が含まれる。H<sub>2</sub>S は、アノード流路内部においてシフト反応を阻害し、反 応は未平衡状態となる。多くのガス化燃料の主成分であ るCOがH。へ十分転換されずアノード出口H。濃度が 1%を下回るような条件では、電池電圧が低下すること が報告されており、このような実電池における発電特性 をシステム熱物質収支に反映させることも、現実的なシ ステム構成を得るためには重要となる(%)。そこで石炭 ガス化 MCFC 発電システムを対象に熱効率解析を行い、 電池出口 H<sub>2</sub>濃度とシフト反応進行度の関係を明らかと した。さらに、シフト反応未平衡状態がシステム全体の 特性に与える影響度を調べた。検討の対象としたシステ

ムは、アノード出口ガスをアノード入口に再循環させる アノードガスリサイクルシステム、及び、アノードガス リサイクル系を省略しアノード出入口間に熱交換器を設 けたアノード熱交換システムである。

表4-4-1 に、電池の安定した発電のために必要なガス 条件のうち、システム解析に反映させた運転限界を示す。 表中カソード入口での炭酸ガス分圧はニッケル短絡を抑 制することを目的としたものである(3-2-6項参照)。こ れらのガス組成や運転条件を考慮することにより、実電 池の発電特性を反映したシステム性能の解析が可能とな る。

図4-4-1(a)にアノードガスリサイクルシステムの 構成図を示す。アノードガスリサイクルの目的は、アノ ード入口部分における炭素析出を防止することである。 炭素析出防止のために必要なアノードガスリサイクル率 は80%程度となることが分かった。図4-4-1(b)には アノード熱交換システムの構成図を示す。本システムで は、アノード入口におけるガス温度を所定の温度に上昇 させるため、アノード出口ガスとの熱交換を行うシステ ム構成となっている。また、アノード入口におけるCO<sub>2</sub> 濃度が低くなるため、ガス組成から見る限り高い電圧が

#### 表4-4-1 解析に考慮した電池の運転制約要因 と制約条件

場所	運転制約要因
アノード入口	炭素非析出条件
アノード出口	水素濃度1%以上
カソード入口	低炭酸ガス(0.1MPa以下)分圧

期待できる。本システムの場合、炭素析出防止のために は、アノードガスに蒸気を添加する必要があり、排熱回 収系からの蒸気供給を伴う構成になっている。燃料ガス への蒸気添加量は約60%程度が必要となる。

これらのシステムに対して、アノード流路内部におけ るシフト反応が未平衡状態となる場合について、アノー ド出口水素濃度に関する解析を行った。シフト反応の平 衡状態に関しては、K={( $H_2 \cdot CO_2$ )/( $CO \cdot H_2O$ )<sub>決平衡</sub> /{( $H_2 \cdot CO_2$ )/( $CO \cdot H_2O$ )<sub>沖衡</sub>の値を解析に導入し、K の値を1以下の範囲で変更することによりシステムの 熱物質収支解析に反映させた。図4-4-2に、Kの値が 0.4に低下した場合の、アノード出口における $H_2$ 濃度と 設定燃料利用率の関係を示す。アノード出口における



図4-4-2 アノード出口H<sub>2</sub>濃度のプラント燃料利用率依 存性[K={(H<sub>2</sub>・CO<sub>2</sub>)(CO・H<sub>2</sub>O)<sub>]味平衡</sub>(H<sub>2</sub>・ CO<sub>2</sub>)(CO・H<sub>2</sub>O)<sub>J平衡</sub>]



図4-4-1 不純物(H<sub>2</sub>S)影響度検討の対象とした石炭ガス化複合MCFC発電システムの構成

H<sub>2</sub>濃度が1%程度以上となる燃料利用率の領域は、ア ノード熱交換システムの方が広くなっており、アノード 熱交換システムは、アノードガスリサイクルシステムに 比べて、燃料利用率を高く設定した運転が可能であるこ とが分かった。

一方、ニッケル短絡抑制のためには酸化剤ガス(カソ ードガス)中のCO。分圧を低くした運転が必要である。 カソード側のシステム構成に注目すると、検討を行った システムではカソードガスリサイクル系にボイラーを設 置し、電池からの熱量を蒸気タービンに回収することに よりシステム全体の熱効率を向上させるような構成とな っている。スタックの温度はカソードガスリサイクル系 での熱回収量と空気圧縮機からの供給空気量により制御 される。従って回収熱量を変えればシステムへの供給空 気量が変化し、カソードCO。ガス分圧を調整できる。シ ステム熱効率とカソード炭酸ガス分圧についての検討結 果を図4-4-3に示す。ニッケル短絡抑制のための運転可 能領域において、カソードCO<sub>2</sub>ガス分圧を低下させると、 アノードガスリサイクルシステムでは熱効率の低下を伴 うのに対し、アノード熱交換システムでは、逆に熱効率 の上昇を伴うことが分かった。

以上の結果から、実電池における不純物の影響を考慮 することにより、アノード熱交換システムは、石炭ガス 化燃料のような高CO濃度、低H2濃度燃料に対して、 幅広い燃料利用率で運転可能であり、カソード炭酸ガス 分圧を低減させた条件にも十分対応可能なシステムにな ることが判明した。

### 4-4-2 広負荷域対応システム

MCFC発電プラントは、電池本体側からみれば、発 電効率の高い定格点にてベース電源として運用されるこ とが望ましいが、電力系統側から見れば、電源構成上、 ミドル負荷運転も含めた幅広い負荷領域に対応すること が要求される。従って、MCFC発電プラントを高効率、 かつ幅広い負荷範囲に亘って運転することは、MCFC の早期導入に向けた重要課題である。これまでに提案さ れている MCFC 発電システムでは、定格点において最 大効率が得られるように空気流量とMCFC容量を決定 し、ガスタービン圧縮機の回転数は一定として設計して いる。従って圧縮空気量も一定となり、部分負荷運転時 には、スタック冷却用空気が過剰となり圧縮空気の一部 を燃料電池からバイパスさせ、燃料を追い焚きして直接 ガスタービンに供給している。このため、部分負荷効率 が大幅に低下するという課題があった(7)~(10)。本来、 MCFC本体には部分負荷時においても発電効率が高い という特徴があるが、このような設計では燃料電池の特 徴を十分に引き出せていない状況にあった(11)。

そこで、天然ガスを燃料とする MCFC 発電システム を対象とした熱物質収支解析を実施し、広い負荷範囲に おいて高効率発電が可能なシステムを提案した。解析に 当たっては特に、1ニッケル短絡及び腐食管理の指標と



図4-4-3 カソード炭酸ガス分圧と熱効率の関係

なるスタック運転温度範囲、2スタックへの安定した燃料供給のための最大燃料利用率、3極間差圧を適正範囲内に保つためのカソード流路圧力損失の上限値を管理項目とした(**表**4-4-2)。運転負荷範囲を拡大するには、 負荷変動時にスタック内部における発熱量が変化するため、発熱に合わせたスタックの冷却方式が重要な技術課 題となる。

図4-4-4(a) にベースとした外部改質型 MCFC 発電 システムの構成を示す(ケース1)。燃料予熱器と蒸気 発生器からの天然ガスと蒸気を混合し、改質器によりH<sub>2</sub> を主成分とする燃料ガスを生成する。この燃料は MCFC のアノード流路内に供給され、発電反応の後、 改質器の燃焼部に供給され、燃料改質プロセスでの吸熱 をまかなうために燃焼される。一方、空気は圧縮機で加 圧され、改質器の燃焼排ガスと混合してから燃料電池の カソード側に供給される。カソード排ガスの一部はガス リサイクルプロワにより、カソード入口側に再循環され、

#### 表4-4-2 発電特性解析に当たり考慮した実電池の 運転可能条件範囲

位置	設定条件	条件設定の目的
An/Ca入口温度	> 600	Ni短絡抑制
An/Ca出口温度	< 660	腐食抑制
燃料利用率	< 85%	燃料ガス不均一分配抑制
カソード圧力損失	< 3kPa	ガスリーク抑制
セル電圧	> 700mV	安定した発電

MCFCの温度を調整する役割を果たす。カソード排ガ スの一部は改質器燃焼部の燃焼用空気として利用され、 残りは膨張タービン入口へと導かれる。膨張タービン排 ガスは燃料改質用の蒸気を生成した後、系外に放出され る。

本ベースシステム (ケース1)では、前述したよう に、部分負荷運転時にシステム効率が低下する。そこで、 MCFCの冷却空気が過剰とならないよう、空気圧縮機 をガスタービンから分離し、回転数制御により流量を変 更可能となるシステム(ケース2)を考案した。本シス テムでは、空気圧縮機の流量と圧力比の関係をもとに、 高負荷運転時で MCFC の冷却空気が多量に必要なとき は、空気圧縮機の回転数を増加させて高圧運転する一方、 部分負荷運転時で MCFC の冷却用空気量を多く必要と しない場合には、空気圧縮機の回転数を低下させ、低圧 運転している<sup>(12)~(18)</sup>。即ち、MCFCシステムが変圧運 転されることとなる。変圧運転は、空気流量の多い時に 高圧となるため、MCFCでの圧力損失が小さくなるこ とから、ウエットシールの保護に有利であり、空気流量 の少ないときは、低圧運転となるため、カソード炭酸ガ ス分圧が低下し、Ni 短絡による MCFC の寿命面で有利 となる。なお、本ケースではカソードリサイクル系に冷 却器も設置し高負荷時のスタック冷却を補助している。

ケース2では、高圧運転時には、燃料改質率の低下に 伴い燃料利用率が低下し、システム効率が低下する。そ



図4-4-4 天然ガスを燃料とする広負荷対応発電システムの構成

こで、アノードガスリサイクル系並びに補助(断熱)改 質器を設置し、高圧運転時でも燃料の改質率を高く設定 でき、熱効率を高く取れるシステム(ケース3)につい ても検討した<sup>(7)(19)</sup>。

図4-4-4(b)に、空気圧縮機を変圧運転とし、カソ ードガスリサイクル系にガス冷却器を設置したケース2、 及び、ケース2にアノードガスリサイクルと断熱改質器 を設置したケース3のシステム構成を示す。また、対象 とした3ケースにおける負荷率に対する熱効率の解析結 果を図4-4-5に示す。

ケース2では、100%負荷運転時にシステム圧力が上 昇し、燃料改質率が低下するため熱効率が低下するもの の、60%程度の部分負荷時に熱効率は55%程度と最大値 を示した。ケース3では、高圧運転時にアノードリサイ クル系の追設によって改質率を高く保つことができるた め、ケース2と比較して、100%負荷時の熱効率が高く なった。いずれのケースでも、100%負荷時における熱



図4-4-5 性能比較を行ったシステムの部分負荷特性

効率はベースケースと比較して低下するものの、幅広い 負荷範囲で熱効率がベースケースより高くなっているこ とが分かる。これらの解析より、負荷変動に幅広く対応 する MCFC システムを構成するためには、回転数制御 による変圧運転型空気圧縮機の組み合わせが有効である ことが明らかとなった<sup>(20)</sup>。

# **コラム5**: MCFC による炭酸ガス濃縮

MCFCは、発電に伴って炭酸ガス(CO<sub>2</sub>)がカソ ードからアノードに移動し、その結果、CO<sub>2</sub>濃度が カソード側に比べてアノード側で高くなるという 原理的な特徴をもっている。このため、アノード 排ガス中のH<sub>2</sub>Oを取り除くとCO<sub>2</sub>濃度は90%近く なり(N<sub>2</sub>を含まない天然ガスなどの燃料を使用し た場合)、CO<sub>2</sub>を効率よく分離回収することが可能 となる。

しかしながら、MCFCのカソード反応は

CO<sub>2</sub>+1/2O<sub>2</sub> + 2e<sup>-</sup> CO<sub>3</sub><sup>2 -</sup>

であるから、カソード側に反応ガスとしてCO<sub>2</sub>を 供給しなければならない。通常のプラントでは、 カソードに必要なCO<sub>2</sub>はアノード反応

 $H_2 + CO_3^2 - H_2O + CO_2 + 2e^2$ 

で発生するCO2のほぼ全量をリサイクルすること

によって供給している(図(a))。

一方、高濃のCO<sub>2</sub>を含むアノード排ガスに着目 して、アノード排ガスをCO<sub>2</sub>回収プラントに導入 することが考えられ、この場合、カソードで必要 なCO<sub>2</sub>を系外から導入する方式が検討されている。 この方式のCO<sub>2</sub>分離回収MCFCプラントに、既設 火力発電所、製鉄所、ごみ焼却場などから排出さ れる燃焼排ガス(CO<sub>2</sub>を含む)をカソードへの酸化 剤ガスとして導入すれば、それら排ガス中に含ま れるCO<sub>2</sub>を効率よく濃縮するシステムとなる(**図** (b))。

例えば、7MW 級 MCFC 発電プラントにおいて燃料を天然ガスとし、電流密度 150m A / cm<sup>2</sup>、燃料利用率 85% とした場合、最大約 6.3 トン/時間の CO<sub>2</sub>を濃縮回収できる。



図 通常システムと外部からのCO2を濃縮するシステムの比較

# 初期導入機と将来展開 (実用化のための製造 技術と導入シナリオ)

音

第

これまでの開発成果を受けて、300kW級のMCFC発電システムの導入が始まろうと している。また、その製造設備の整備も進んでいる。将来のより大きなプラントにつ いても最新の知見を入れての概念設計が行われ、経済性や環境特性が明らかとなって いる。さらに、量産化によるコスト低減に合わせた導入展開などの検討も進んでいる。 実用化のための重要課題はプラントコストの低減と電池の長寿命化である。今後は、 それらに加え、MCFCの新しい機能創出、技術成熟のための研究が必要である。 第5章 初期導入機と将来展開(実用化のための製造技術と導入シナリオ) 目次

中部電力株式会社 電力技術研究所 燃料電池チーム 副主査 久野 慶博 石川島播磨重工業株式会社 エネルギーソリューション事業推進部

技術ーグループ 課長 遠井 正明

横須賀研究所 エネルギー化学部長 渡辺 夫

名誉特別顧問 上之薗 博

5 -	1	初期導入機の実際	81
5 -	2	導入を支える製造技術	82
5 -	3	実用プラントの概念設計と将来像	84
5 -	4	実用化へのシナリオ	92
5 -	5	これからの研究展開	94
コラ	<b>Ц</b> 6	: MCFC 研究の草創期と実用化への期待	96



久野 慶博(1977年中部電力(株)入社) 入社後は火力部門の管理業務を行ってきた。 研究部門在籍中、以前は主にLNG冷熱利用 技術や蓄熱技術の研究開発に携わってきた。 現在は、高温型燃料電池の研究や木質バイオ マスを利用したガス化技術の研究など環境を 重視した開発を推進している。また、国の開 発計画にも携わっている。MCFCとバイオ マスガス化の組み合わせによる発電を是非実 現したいと考えている。(5-1執筆)

渡辺 夫(22ページに掲載) (5-3、5-4、5-5執筆)



遠井 正明(1982年石川島播磨重工業(株) 入社)

高温ガス炉(HTTR)の中間熱交換器の設計等を担当、その後日本原子力研究所へ出向し、HTTRの開発に従事した。MCFCの開発には1984年頃から参加し、システム設計やスタックの伝熱流動の挙動解析等を担当した。現在は、MCFC開発のプロジェクトマネージメントを担当し、早期実用化を目指している。(5-2執筆)



上之薗 博(1953年入所)

電力系統の動特性制御を中心に研究開発を 行い、その後、自然エネルギー、新エネルギ ー、超電導などの先端技術の責任者として開 発にあたった。中でも溶融炭酸塩形燃料電池 については電気事業の将来を考え先端をきっ て推進してきた。

電力研究所長、情報研究所長、専務理事を 経て、現在名誉特別顧問

(コラム6執筆)

# 5-1 初期導入機の実際

循環型社会創造に大きく貢献できる新しい技術として、 コージェネレーションシステムだけではなく、社会的に 大きな問題となっている廃棄物の有効な利用方法につい ても検討を進める必要がある。

廃棄物には、市民生活から出る一般廃棄物(生ごみ、 可燃ごみ、不燃ごみ)と企業から出る産業廃棄物(生ご み、可燃ごみ、不燃ごみ)があり、自治体は主に一般廃 棄物の収集・運搬・処理を行っている。また、産業廃棄物 は、廃棄物処理業者が、収集・運搬・処理を行っている。

1999年3月時点で国内における一般廃棄物の排出量 は年間5,000万トンを越え、更に産業廃棄物では、年間 25,600万トン(全39,700万トンから建設残土などの不燃 物を除いた可燃物)を加えると年間約3億トンになる。

一般可燃廃棄物は大部分が焼却炉で焼却処理されてい るが、一部の廃棄物処理施設では、廃棄物燃焼炉の熱を 熱源として蒸気を発生させてタービン発電機を駆動する 汽力発電方式により廃棄物の持つエネルギーを電気とし て回収している。しかし、発電効率が低いなどの問題か ら、一部の大規模な廃棄物処理設備にしか導入されてい ないのが現状である。

このような問題を解決できるシステムとして、高効率 でかつ多種燃料に適用可能なMCFCが最も有効なシス テムと考え、中部電力ではこのシステムを新名古屋火力 発電所の構内に設置すると共に、廃棄物をガス化し燃料 として供給できるガス化装置も設置し、組合せシステム の実証研究を計画している。

#### (1) 300kW 級システムの導入状況

中部電力(株)は新名古屋火力発電所構内に300kW級 MCFCを設置した(図5-1-1)。300kW級MCFCは、新 エネルギー・産業技術開発機構(NEDO)からMCFC 技術研究組合が受託し進めている国のプロジェクトで開 発されている加圧小型発電システムの技術を国内初の商用 機として採用したものである。

燃料電池発電システムは MCFC と改質器を納めてい る電池モジュールと電池に燃料、空気等を供給する機器 を納めた BOP (Balance of Plant、電池本体以外のプラ ント構成機器) スキッドから構成される。そのシステム



図5-1-1 300kW級MCFC発電設備

フローを**図**5-1-2 に示す。システムの設計仕様は下記の とおりである。

・標準燃料	;	天然ガス
・燃料使用量	;	60m³/h
・MCFC出力	;	300kW級(AC)
・圧力	;	0.34MPa
・発電端出力	;	358kW(MCFCおよび排気
		タービン式発電機の合計)
・発電端効率	;	54%(LHV 基準)

#### (2) 発電試験の状況と今後の予定

MCFCの据付は2002年12月に完了し、PAC試験(シ ステムの試運転と制御の確認試験)を2月上旬まで行い、 2003年2月中旬に発電を開始した。その後、110kWま で出力を上げ、補機の状態、ガス性状およびガスリーク について確認した。

今回の試験を通じて、熱伸び差による機器の損傷や変 形、排ガス循環サイクルにおける機器の腐食など発電試 験を開始するまでには、非常に険しいものがあった。

2004 年度に計画している MCFCの発電試験では、 LNGによる基本性能データを取得すると共に、廃棄物 ガスのカロリーを模擬したガスにより MCFCの性能・ 運用性・制御性を把握する予定である。さらに、木質バ イオマスによるガス化技術と組合せたトータルシステム として発電試験を2005 年度に実施し、運用性・制御性 などのシステム評価を行う計画である。



図5-1-2 300kW級MCFC発電システムフロー

# 5-2 導入を支える製造技術

MCFCの開発は、市場導入に向けてスタックの高積 層化とプラントの実証段階を迎えている。市場導入に際 しては、電池部品の大量生産技術を確立する必要がある 他、歩留まりの向上と品質管理が重要となる。また、競 合する他機種とのコスト競争に対しても対抗し得るコス トの実現が不可欠であるが、量産化や品質管理にも密接 に関連するため、これらも含めて早期の実現が求められ ている。ここでは、電池部材の大量生産技術と電池の高 積層化にかかわる技術について示す。

### 5-2-1 電池部品の大量生産技術

MCFCのセルを構成する主コンポーネントは、電極 (アノード、カソード)、電解質板、セパレータである。

### (1) 電極・電解質板の製造

#### 1 テープ成形技術

電極、電解質板とも大量製造技術として、連続式のテ ープ成形方法(ドクターブレード法)によりテープ状に 成形したのち、電極のみ焼成炉で所定の温度まで加熱し、 多孔質の焼結体とする。これらの技術では、セラミック ス技術や製紙プロセスでの塗工技術がベースとなっている。

電池の性能は電極内の炭酸塩分布状態に大きく依存し、 かつ電極、電解質板の空孔分布がこの炭酸塩の分布を制 御する。このため、板厚および空孔が均一な実機サイズ (1m<sup>2</sup>級)の電極、電解質板の製作技術および品質管理 が重要である。成形テープはバッチ毎にサンプルを取り 出して品質検査を行っている。

電解質板は、LiAIO<sub>2</sub>粉からなる多孔質体であり、成 形に際しては、LiAIO<sub>2</sub>粉に溶剤を混合させスラリー状 (固体と液体を混合した粘性のある状態の物質)にして、 電極と同様にテープ成形法により連続成形している。連 続テープ成形設備を図5-2-1に示す。

#### 2 焼成技術

当初1m<sup>2</sup>級電極を焼成する際、同時に数十枚程度の焼 成が可能な大型の電気炉を用いていたが、昇温と降温に 時間がかかるため量産化には対応できなかった。このた め、連続焼成炉を開発し、連続焼成が可能となったこと で量産化の目処を付けた。連続焼成設備を図5-2-2に示 す。



図5-2-1 連続テープ成形設備



図5-2-2 電極焼成用の連続焼成炉

#### (2) セパレータの製造

燃料電池のセル部材の中でコストに占める比率の高い 部材がセパレータであり、量産化とともにコストダウン が重要な課題である。また、セパレータは薄板の積層構 造であり、構成部材の精度が要求される。したがって、 部品点数の削減、軽量化、製作工程の簡素化等を図って 量産化とコスト低減の両方の実現を目指している。セン タープレートは両面にそれぞれ水素、および酸素が流れ るため、SUSとNiのクラッド鋼を使用している。当初、 セパレータのガス流路はセンタープレートの両面にコル ゲート板を配置した構造としていたが、部品点数が百点 以上となること、また、炭酸塩の濡れ面積が広く、腐食 による炭酸塩の消失が多くなり、寿命の点で問題があっ た。これらの問題点を解決するため、センタープレート をプレス加工して流路を構成する設計に変更した(3-3 節参照)。センタープレートのプレスでは、大面積の薄 板に細かな流路を実現するため、2万トンプレスを用い

ている。これにより、コルゲート式セパレータの部品点 数の大幅な削減(113点 5点)を実現した。溶接につ いては、熱歪が少ないレーザー溶接を採用している。ま た、耐食性が必要なマニホールドのシール面に使用する 部材については、研究開発の成果として製品化された、 耐食性鋼板(アルミメッキ鋼板)を採用することで更な るコストの低減が可能になった。

これらの対策により、セパレータのコストは当初と比 較して1/10程度まで低減することに成功するとともに、 製作時間の大幅な短縮を実現した。

#### 5-2-2 スタック高積層化技術

#### (1) スタック内の流量配分特性評価

スタックの高積層化設計に際して重要な項目は、スタ ックの積層方向およびセル面内での流量配分特性である。 MCFCの電池本体の発電効率を上げるためには、燃料 利用率を上げる必要がある((1-2-1)式参照)。一方、燃 料利用率を上げた場合、燃料の流量配分のばらつきによ り、燃料不足が生じるとアノード電極が酸化され、著し い電池性能の低下を招く危険性がある。したがって、ス タックにおける流量配分の均一化が重要となるため、ス タックの3次元解析モデルを開発し、流量配分特性を評 価している。

#### (2) スタック内の伝熱流動解析

スタックの製造工程では、製造した個々の部材を組立 て、その後工場内の前処理設備で、脱脂、含浸、酸化と いった前処理が必要となる。特に含浸工程では、セルの 面内の温度分布と積層方向の温度分布を均一に保持しな がら昇温する必要があるため、スタック内の温度解析を 行い、加熱方法の妥当性の評価も行っている。また、結 果に関しては、設備設計や実際のオペレーション方法に 反映している。一方、スタックは電極部とマニホールド 部をそれぞれ適切な締付け力で締付ける必要がある。こ のため、スタックの締め付け構造(上下ボルスター、締 付ロッド他)の解析を実施し、評価している。また、運 転温度が680 程度と高温であることから、長期運転に よる材料の高温解析(クリープ強度評価)等を実施して いる。(250 セルを積層した高積層スタックの外観は図 2-4-2 参照)

# 5-2-3 プラント化技術

### (1) プラントの制御設計

MCFC プラントの設計にあたっては、負荷変化、緊 急停止などにおける制御性の評価が重要となる。このた め、システムの評価においては、動特性解析シミュレー ションコードを用いて、実プラントにおける様々な運転 条件、再現性の必要な試験条件等を事前に評価している。 動特性シミュレーションコードは、100kW級のシステ ム制御試験結果や、1,000kW級発電プラントの運転結果 等をもとに検証を行い、機器モデルや制御モデルの精度 の向上を図り、MCFC発電プラントの制御技術の確立 に役立てている。動特性シミュレーションコードの開発 では、電力事業用火力発電プラントの制御解析技術をベ ースにしている。

#### (2) 炭素析出と差圧制御

MCFC プラントシステムの設計上特に検討すべき項 目としては、炭素析出の防止方法の検討、差圧制御方法 が挙げられる。炭素析出が生じると、電池内ガス通路の 閉塞や多孔質電極の閉塞などによって、電池性能が低下 する。対策としては、蒸気注入方式、アノードガスリサ イクル方式、アノードガス再処理方式等が考えられ、シ ステム設計に際して最適な方法を選択する必要がある (コラム4参照)。

また、アノード、カソード間の許容差圧や差圧制御方 式についての検討も重要な課題である。電解質は、通常 溶融状態となっているため、通常運転時において電解質 にかかる極間差圧(カソード/アノード間差圧)を、電 解質の吹き抜け防止のため数 kPa 以下に保持する設計と している。

#### (3) 高効率システムの実現

現在開発を行っている MCFC は外部改質方式を採用 し、将来の大規模火力代替システムとして、更なる効率 の向上を目的に、MCFC とガスタービンを組み合わせ たハイブリットシステムの実現を目指している。このた め、特性の異なる MCFC とガスタービンを組み合わせ たシステムの検証が重要である。

# 5-3 実用プラントの概念設計と将来像

### 5-3-1 各種プラントの構成と効率

MCFC 発電プラントの実用化に向けて、当研究所で は、これまでに数多くのプラント概念設計を実施してき た<sup>(1)-(4)</sup>。以下に示す検討では、これまでの設計結果を ベースに、最新の研究成果を反映させつつ、より現実性 が高く、MCFC 発電の特徴を最大限に発揮できるよう に従来の概念設計結果の改良を試みた<sup>(5)-(8)</sup>。

#### (1) 概念設計の基本方針

設計は、天然ガスを燃料とする分散電源、LNGを燃料 とする火力代替集中電源、石炭を燃料とする複合発電と しての集中電源の計3方式について実施した。これまで 実施されてきた一般的なプラントの概念設計では、可能 な限り高い発電効率を得る事を目標にしてきたが、これ に対して今回の設計では基本的に以下の方針に従った。

#### 特殊機器の排除

開発の難度が高い特殊機器をプラントに適用すること により、むやみに効率向上を追求することは避け、より 現実的な機器構成によるプラント設計に留意した。その 端的な例が空気圧縮機および膨張タービン(すなわちガ スタービン)である。従来の設計は、必要な容量のター ビン発電機が容易に入手できるものと想定し、電池以外 の機器に対しては実際の型式などにとらわれず設計を実 施してきた。これに対して今回は、既存機器あるいはそ の改造で対応することとし、より現実的な設計を目指し た。本方針は建設費低減にもつながることも期待できる。 特に火力代替用発電では、使用できるガスタービンが限 定されるので、電池出力規模はむしろガスタービンサイ ドから決定することとした。

2 最新電池特性の適用

電池特性の設定には最新の電池性能の実測値(小型単 セル特性の平均値)を適用した。従来の電池性能には国 の開発目標を設定していたが、現状では、その目標を上 回る性能が得られており、より現実的な設計結果が期待 できる。

#### 3 電中研性能表示式の適用

運転条件によって、様々に変化する電池性能の推算は、 運転条件としての温度、圧力、ガス組成などをパラメー タとする IGT の簡易式<sup>(9)</sup>に替えて、当研究所が提案して きた精度の高い表示式<sup>10 [11</sup>/(3-1節参照)を適用した。

4 基準出力密度の増大

プラント初期運転時の出力密度設定を1.8kW/m<sup>2</sup>レベル (電流密度200mA/cm<sup>2</sup>に対応)とし、従来(1.2kW/m<sup>2</sup>、 電流密度150mA/cm<sup>2</sup>に対応)の設定値の5割増とした。 これにより建設費の大幅な低減を目指した。

#### (2) 設計項目

従来の概念設計<sup>(1)-(4)</sup>ではプラント定格性能、部分負 荷性能、機器構成レイアウトなどを明らかにしているが、 本再設計では、新たに以下の検討を加えた。

1 電池性能経時変化の考慮

経時的に変化する電池性能を考慮しつつ、プラントの 運用方式について検討を加えた。本経時変化に関しては、 後述する電池特性の表示式を経時変化の効果を反映させ た形として考慮した(3-1-3項参照)。プラント運用方式 によっては、電池性能の経時変化にともなう補機類の運 転条件変化を想定する必要が生じるが、その場合には補 機の仕様に余裕を持たせて対応することとした。

2 ニッケル短絡寿命の考慮

現状の MCFC では、電池寿命がニッケル短絡に大き く制約されるという課題がある。最新の研究成果では、 当面の目標とされる4万時間の寿命に対して、基準とな る1.2MPaの運転圧力のもと、ニッケル短絡が発生しな い見通しが得られている(3-2-6項参照)が、いずれに せよその制約は存在する。

ニッケル短絡寿命は、プラント効率に直結する電池電 圧を決定する電解質厚みや運転圧力と密接な関係があり、 電池電圧とはトレードオフの関係にある。今回の設計で は電池寿命とプラント効率の関係についても検討した。

#### (3) 設計したプラントの性能と特徴

概念設計を実施した3プラントの定格性能(効率)を図 5-3-1に示す。初期性能は最近の電池性能の向上に起因し て、1.8kW/m<sup>2</sup>の高い出力密度を想定したにもかかわらず、 十分な送電端効率が得られることが分かった。これは近 年の電池性能向上によるものである。当然のことながら 電流密度を低下させればこの効率はさらに向上する。

プラントそれぞれの特徴は以下の通りである。

1 天燃ガス利用分散型外部改質プラント

電池部分をモジュール化し、内陸設置のための陸上輸 送が可能な規模を想定し7MW級とした。基本的な構成 は、天然ガス利用のMCFCプラントー般と同様である が、改質器には外部改質のプレートタイプを適用し、 MCFC本体とあわせて、一つの圧力容器内に収納し、 熱放散の低減による高効率化を図っている。ガスタービ ンには燃焼器が切り離し可能な構造を持つ既存の型式を 選定した。電池運転圧力は圧縮機の吐出圧力に対応して 約1.2MPaとしている。本システムは国の計画において 開発中の高性能モジュールを組込む構成となっている。 MCFCの実現にはこのようなプラントの実証が重要で あり、特にその外観ならびに基本仕様を図5-3-2、表5-3-1に示した<sup>(8)</sup>。

2 LNG利用火力代替型プラント

燃料にはLNGを適用し、外部改質を想定した。構成 上の特徴としては、既存のガスタービンを改造して用い



図5-3-1 設計したプラントの性能



図5-3-2 天然ガス利用分散型 外部改質プラント(7MW級)

#### 表5-3-1 天然ガス利用分散型プラント主要諸元

項 目	内容
燃料	天然ガス
発電端出力	7.08MW
送電端出力	6.84MW
モジュール数	8基
スタック数	2台/モジュール
出力(dc)	372kW/スタック
セ ル 数	227枚/スタック
電流密度	200mA/cm <sup>2</sup> ( 2000A/cm <sup>2</sup> )
電圧	755mV/セル
運転圧力(電池入口)	1.16MPa
改質率(総合)	95%
(ワンパス)	77.2%
燃料利用率(総合)	87.3%
(ワンパス)	75%
O2利用率 ( ワンパス )	17.4%
CO2利用率(ワンパス)	61.7%
カソード入口CO₂分圧	0.082MPa
アノードガスリサイクル率	59.4%
カソードガスリサイクル率	61.3%
ガスタービン入口温度	787
排気温度	105
敷地面積	31m × 22m ( 0.096m <sup>2</sup> /kW )

ている点が挙げられる。本構成では既存の3種類のガス タービンを候補として比較検討し、圧力比が比較的小さ く、改造に要する費用が少ないと考えられる機種を選定 した。これによって、プラント出力規模は約110MWと なった。電池運転圧力は1.0MPa、電池排出ガス温度 680 、プラント排ガス温度160 (HRSG出口)である。 これに合わせてLNGは燃料圧縮機で昇圧されている<sup>(516)</sup>。 3 石炭利用複合発電プラント

出力は650MW級とし、ガス化設備には酸素吹き加圧 噴流床方式、ガス精製設備には湿式を想定した。燃料電 池部では、アノード入口での炭素析出を避けるため、ス タック入口の燃料ガスに低圧蒸気を供給して加湿すると ともに、アノードガスリサイクルを行ってアノード入口 温度を高温に保持している。電池運転圧力は1.2MPa、 プラント排出ガス温度はHRSG出口で112 である<sup>(718)</sup>。

#### (4) プラント運転方法

MCFCの出力電圧は、運転時間の経過に伴って徐々 に低下していく事が避けられない。これは電池内部抵抗 が徐々に増大する事によるものである。これに対応した MCFCプラントの運用方式としては、1 プラント出力 一定運転、2 電池負荷電流一定運転、3 電池発熱量一定 運転の3方式が想定できる<sup>(5)</sup>。

出力一定運転は、電池電圧の低下に伴って負荷電流を 増大させて対応するもので、これにより電池電圧、発電 効率の経時的低下は最も大きくなる。負荷電流一定運転 では、低下率はこれより小さくなるが、出力も徐々に減 少することになる。これら2方式では、電池温度を一定 に保つためのカソードガスリサイクル流量も増大させて 対応する必要がある。発熱量一定運転は、電池冷却用の カソードガスリサイクル流量の増大を避けることを目的 にしたもので、電池内部抵抗増大に伴い負荷電流を減少 させて対応する方式である。プラント出力の減少は最も 大きくなる。3方式の特徴を表5-3-2にまとめた。

設計対象とした3プラントにおけるこれらの運転方式 の違いについて検討した<sup>(518)</sup>。一例として、**表**5-3-3に、 天然ガス利用分散型プラントに対する、出力一定運転方 式と発熱量一定運転方式による性能変化を示す<sup>(8)</sup>。電流 密度一定運転については4万時間後の空気量を確保しよ うとすると、運転開始時の空気バイパス量が、出力一定 運転の場合に比べて非常に大きくなり、運転開始時の MCFC出力比が小さくなって発電効率が大きく低下し てしまうため検討しなかった。

#### 表5-3-2 各種運転方式の特徴

運転 方式	メリット	デメリット
出力 一定	<ul> <li>・プラント送電端出力</li> <li>一定(累積発電電力 量最大)</li> </ul>	<ul> <li>・ガス供給・循環用回転機 負荷増加最大</li> <li>・特性低下時点での負荷を 想定した機器容量設定が 必要(循環用回転機の大幅 な部分負荷運転要求)</li> <li>・効率低下最大</li> </ul>
電流 密度 一定	・改質器負荷変化小	<ul> <li>・プラント出力低下</li> <li>・ガス供給・循環用回転機 負荷増加</li> <li>・効率低下</li> </ul>
電池 発熱 量一 定	<ul> <li>・ガス供給・循環用回 転機負荷変化小</li> <li>・上記回転機を常に定 格で使用可</li> <li>・効率低下最小</li> </ul>	・プラント出力低下最大

運転方式	項目	運転開始時	4万時間運転後
出力 一定運転	送電端効率(HHV基準)(%) 送電端出力(MW) 電池出力(MWac) ガスタービン出力(kW) 電池電圧(mV) 電流密度(mA/cm <sup>2</sup> )	50.7 6.00 5.17 1,058 771 175	45.0 6.00 4.32 1,963 689 165
	総発電電力量 ( kWh )	2.40 × 10 <sup>8</sup>	3
発熱量 一定運転	送電端効率(HHV基準)(%) 送電端出力(MW) 電池出力(MWac) ガスタービン出力(kW) 電池電圧(mV) 電流密度(mA/cm <sup>2</sup> )	52.4 6.84 5.78 1,304 755 200	49.0 5.62 4.77 1,102 687 181
	総発電電力量 ( kWh )	2.49 × 10 <sup>8</sup>	3

表5-3-3 天然ガス利用分散型プラントの 運転方式による性能の変化

注)電池性能は4万時間で10%低下すると仮定(150mA/cm<sup>2</sup>時)

出力一定運転では、運転開始時点での性能が、表5-3-1 に示した主要諸元からずれている。これは4万時間運 転後にも一定出力を確保するための方策である。本設計 で選定したガスタービンは回転数一定で運転しており、 空気量は大きく変わらないため、電池性能が劣化すると MCFC側の出力を一定にする運転はできず、MCFC出 力の減少分をガスタービン出力で補って、プラント発電 出力を一定にする運用となる。この場合、運転開始時の 空気流量は最適な流量配分に比べて、かなり多くの量を ガスタービン側に流す設定となる。そのためMCFCの 出力割合が減り発電効率は最適値に比べ減少し、運転開 始時点からプラント効率が低下することになる。効率や 出力が直線的に減少すると仮定すると、プラント平均効 率(2万時間時点での効率)は出力一定運転で47.9%、 発熱量一定運転で50.7%となった。

また、4万時間運転による総発電電力量を比較した場 合、出力一定運転では2.40 × 10<sup>8</sup>kWhが得られるのに対 し、発熱量一定運転では2.49 × 10<sup>8</sup>kWhと大きくなった。 平均効率と総発電電力量に関するこれらの結果は、建設 費が等しければ、発熱量一定運転の方が発電原価が小さ くなり、経済的に優れる可能性があることを示している。

#### (4) ニッケル短絡寿命とプラント効率

今回設計した3プラントはいずれもMCFCカソード 入口のCO<sub>2</sub>分圧が調整できるようアノード排気をバイパ スできる構成となっている。天然ガス利用分散型プラン トにおいて寿命と効率の関係を検討した結果を**図**5-3-3 に示す<sup>(7)</sup>。図から明らかなように、CO<sub>2</sub>分圧の上昇と共



#### 図5-3-3 プラント送電端効率とニッケル短絡寿命 のトレードオフ

に、送電端効率は向上するが、ニッケル短絡寿命は短く なることが示された。また、電解質厚さが薄いほど効率 は向上し、寿命は短くなることも示された。本プラント では、電解質厚み1.5mm、CO<sub>2</sub>分圧0.08MPa(7MW プ ラントにおけるカソード入口CO<sub>2</sub>分圧の設計値)におい て、効率と寿命はおよそ51%前後、寿命3万時間程度で トレードオフの関係が得られた。

石炭利用の場合には効率と寿命は、それぞれおよそ 49%、2万時間(電解質厚み2mmを仮定)となり、天 然ガス利用プラントと同様なトレードオフの関係が得ら れた<sup>(7)</sup>。石炭利用プラントにおいては、カソード側に水 蒸気を注入してカソードガスリサイクルの熱交換量を下 げると共にカソードでのCO<sub>2</sub>分圧を抑制すると、送電端 効率は低下するものの、ニッケル短絡寿命の延伸が期待 でき、効率約50%で寿命2万時間となった<sup>(8)</sup>。

#### 5-3-2 プラント経済性の評価

経済性については、プラント機器側に着目した建設費 や生産量による検討の他、市場側を意識した電力系統全 体への導入影響など、様々な検討を進めてきた。

#### (1) プラント建設費

1 限界建設費

まず、既存競合発電設備と同等の発電単価を実現する ため、MCFC発電設備が達成すべき限界建設単価を、 競合発電設備の発電単価をもとに試算した<sup>(12)</sup>。MCFC 発電プラントは、送電端効率55%(HHV基準)、設備利 用率70%、電池価格比率30%、MCFC寿命5年、 MCFC残存価値0%、その他機器耐用15年、その他機 器残存価値10%とした。燃料費は石炭1.5円/Mcal、 LNGは2円/Mcalとし、競合する火力の発電コストは、 天然ガス火力11円/kWh、既存石炭火力10円/kWh、ガ スタービン20円/kWh(1万kW級)とした。限界建設 単価の算出には次の(5-3-1)式を用いた。



また、均等化年経率の算出には次の(5-3-2)式を用いた。

#### 均等化年経費率

 $= (1-\boldsymbol{\alpha}) \times \boldsymbol{r} (1+\boldsymbol{r})^{\boldsymbol{n}} / \{(1+\boldsymbol{r})^{\boldsymbol{n}}-1\} + \boldsymbol{\alpha} \times \boldsymbol{r}$  (5-3-2)

ここで、 は残存価値、 r は金利、n は耐用年数である。 計算の結果、天然ガス火力で 25.1 万円/kW、石炭火 力で 24.3 万円/kW、ガスタービンで 38.8 万円/kW (1万 kW 級) が得られた。これらの限界建設費は、電池本体 価格が7~8 万円/kW 程度になれば十分達成可能になる ものと考えられる。

#### 2 積算建設費

一方、一部を積み上げ方式とした経済性検討も行った<sup>(5)</sup>。 MCFC発電の競合技術である。ガスタービン複合発電 (GTCC発電)の建設コストを念頭に置き、MCFC発電 が目標とすべき建設コストを試算した。検討に当たって はGTCC発電とMCFC発電における構成機器を、両者 に共通な機器と固有の機器に分けた。共通機器に対して はGTCCの従来の建設費をもとに、機器容量や機能の 比較によって、MCFC発電における価格を推定した。 これらの積み上げ結果をもとに、MCFC発電固有の機 器である燃料電池本体、燃料改質器、インバーター(直 交変換器)の総額には、MCFCプラント全体の建設費 がGTCCに競合できるレベルとなるべきことを勘案し て、GTCC建設費総額レベルから上記の共通機器分を差 し引いた残りの部分が対応するものとした。 検討結果を図5-3-4 に示す。、MCFC 発電の建設費の 目標値は、21 ~ 24 万円/kW 程度となり、そのうち、 MCFC 固有の機器(燃料電池本体と燃料改質器および インバーター)の総額としての目標値は10 ~ 11 万円 /kW となった。

電池価格は図5-3-5に示すように、年間200MW程度 の生産量となれば約7万円/kWが見込める<sup>(6)</sup>。したが って、MCFC本体の寿命を5年として5年毎に交換す るとすれば、プラントの全導入量が1,000MWに達すれ ば、図5-3-4に示したプラントとしての目標価格は、達 成可能になると考えられる。

#### (2) 導入展開から見た経済性

MCFC発電プラントは量産化によってその建設費が 低減されることが期待できる。MCFCプラントでは、 通常MCFC本体のみをその寿命期限(数年程度)毎に 交換することが想定されているが、MCFC本体の生産



図5-3-4 MCFCプラントの目標建設費



図5-3-5 MCFCプラントの目標建設費

量は、その交換頻度にも関連する。すなわち、生産量と 寿命は密接に関係しており、導入初期には変換頻度の高 い場合の方がコスト的に有利になる可能性がある。この 点は燃料電池プラントの経済性に関わる大きな特徴と言 うことができる。

まず小規模の生産設備による初期導入から大規模な生 産設備による商用期への段階的な生産設備の拡大を想定 し、図5-3-5に示した生産量と電池価格の関係も用いな がら市場への導入展開に伴う発電コストの推移を検討し た<sup>(6112)</sup>。プラント性能実証を兼ねた少量(5 MW/年) の初期導入から、年産20MW、200MW規模への3 段階 の設備増設を想定すると、図5-3-6に示すように初期導 入から10年程度で10円/kWh台の発電コスト達成が期 待できる。

実際の市場導入においては、初期導入時の展開が重要 となる。全導入量と電池寿命による発電コストの違いの 検討結果を図5-3-7に示ず<sup>(12)</sup>。導入量は市場規模とも考 えることができ、コストミニマムの観点から市場規模に 応じて適切な電池交換期間が存在することが明らかにな った。すなわち初期導入段階における過度の性能目標設 定は、開発費と開発期間の増大をもたらすことから、市 場導入の進展に応じてMCFC発電のメリットを享受し ながら、電池寿命を始めとする性能目標値を導入の各段 階で合理的に設定していくことが重要である。燃料電池 市場は、その規模が達成されれば、電池本体の周期的交 換により電池寿命にかかわらず価格は安定することが期 待できる。



**図**5-3-6 **プラント累積導入量と発電コストの推移** (5、20、200MW/年の段階的な生産設備増強、2、 3、4、5年の段階的な電池寿命改善を仮定)



図5-3-7 MCFCの全導入量と電池寿命による発電 コスト

#### (3) 電源構成から見た MCFC 導入の経済性

MCFC発電設備が電力系統に導入され、需給運用に 組み込まれた場合の全国ベースでの経済性について、 2009年の長期需給見通しに基づき、年負荷持続曲線上 で分析した<sup>(13)</sup>。検討は、5-3-1項での設計プラントを参 考に、MCFCが分散電源、集中(大型)電源(LNG燃 料、石炭燃料)としての設置形態で全体容量の約2%程 度(5,000MW)導入される場合を想定して実施し、定格 負荷運用がそれぞれ全運転時間の3/3、2/3、1/3を占め る3つのケースを対象にした。なお全ケースとも定格負 荷時以外は最低負荷(30%)運用を行うことを想定した。

その結果、系統全体の総発電単価の変化はMCFCの 導入量を少なく設定したため小さくなったものの、集中 (大型)電源として既設電源に代替して導入する場合に 大きなメリットが得られ、LNG燃料の場合には、定格 負荷運用の時間帯が2/3を超える場合(稼働率約80%以 上の場合に対応)において、また、石炭燃料の場合には 全ての負荷運用ケースにおいて、MCFC導入に対応す る分だけ、系統全体の総発電単価を低減できる結果とな った。図5-3-8にLNG燃料の集中配置形態で導入した 場合を例に総発電単価への影響を示す。ケース1におい て既存設備に代替すれば約0.03円/kWhの改善が見られ た。一方、分散電源として導入した場合には、経済性を 得るためには100%近い稼働率が必要で、特に非電気事 業者が設置する場合には、LNG並の価格での燃料調達 が求められる結果となった。



図5-3-8 MCFC発電単価と系統総発電単価の改善 (LNG燃料の集中配置形態の場合) (ケース1:定格で全期間ペース運用、ケース2:全期 間の2/3を定格で運用、残り1/3の期間は最低負荷(30 %)で運転、ケース3:全期間の1/3を定格で運用、 残り2/3の期間は最低負荷(30%)で運転)

# 5-3-3 プラント環境性能の評価

MCFC発電設備の大きな特長である優れた環境保全 性に関しても、プラント単体としての環境特性、系統に 導入した場合の影響を検討した。また、小型分散電源と して導入した場合の経済性も含めた環境特性についても 検討した。

#### (1) 各種発電設備による CO<sub>2</sub> 排出原単位

これまで多方面で検討されてきた電気事業用としての 集中電源のライフサイクルアセスメント(LCA)解析 結果と比較した MCFC 発電プラントのCO<sub>2</sub>排出原単位 を図5-3-9に示す(<sup>13)-(15)</sup>。集中電源としてのMCFCの原 単位は従来の文献によるものであるが、今回検討した分 散電源としてのMCFCと共に、その環境特性は非常に 優れたものであることが分かる。

#### (2) 電力系統から見た化石燃料消費量の削減

5-3-2項(3)における電力系統への天然ガス利用分散 電源、集中電源(LNG燃料、石炭燃料)としての導入 を想定した場合の化石燃料の消費量を重油換算値で検討 した(図5-3-10)<sup>13)</sup>。基本的には、各ケースとも MCFCの稼働率が高い方が燃料消費量が抑えられ省エ ネ効果も高くなる。5,000MWのMCFC導入による石油 換算量のエネルギー消費の変化はおおよそ300万kLの オーダーとなった。燃料種別で見てみると、MCFCの 稼働率変化で影響を受ける燃料種別は、おもに石油であ ることが分かる。LNGや石炭への影響はほとんどなく、 MCFCの導入は石油代替の役割を果たすことになる。

#### (3) 小型分散電源における環境性能と経済性

MCFCの初期導入形態と予想される小型分散電源の 環境特性は、導入展開のための重要な指標になる。そこ で現状では規制が緩やかな民生用を対象に経済性も含め て検討した<sup>(16)</sup>。民生用コージェネレーションシステム からの環境への排出物に関しては、大都市圏の一般環境 大気濃度の5~7%程度を占めるとの報告があり、今後 設置台数が増加すればその影響度は大きくなってくるも のと考えられる<sup>(17)</sup>。

民生のコージェネレーションの75%は事務所、ホテル、 店舗、病院の4業種が占めているが、これらの内、熱需



図5-3-9 各種電源のCO2排出原単位比較



図5-3-10 燃料別消費量の比較(ケース分けは図5-3-8と同様)

要の少ない用途ならびに多い用途の代表としてそれぞれ、 事務所とホテルについて検討した。一例としてホテルに MCFCを導入した場合と競合機種であるディーゼルエ ンジン(DE)を導入した場合の導入前後の環境影響物 質削減率を図5-3-11に比較して示す。ディーゼルエン ジン導入により、省エネルギー性は高まりCO<sub>2</sub>排出量は 削減されるが、NOx、SOxは増大する結果となった。 これに対してMCFCの導入では、全ての項目でディー ゼルエンジンに比較しても優位となることが明らかとな った。

また、導入後の投資回収年数に関して、環境排出物 の排出削減コストを反映させて経済性への影響を検討 した<sup>(16)</sup>。その結果排出物削減コストを加味することに より投資回収年数は数%短縮できた。さらに、MCFC 設備コストが20万円/kW程度まで安くなった時に、初 めて対抗機種(約11万円と仮定)と同等の投資回収年 数を達成できることが分かった。ホテルにおける例を 図5-3-12に示す。

この他、近年IT関連産業の急速な伸びに伴って設置 が盛んになっているデータセンターについても、一定の 熱需要を有する点で最もMCFCに適した適用形態の一 つとしてその環境性と経済性を検討しており、UPS代 替として想定した場合、MCFCの費用が80万円/kW (電池交換費用1回分込み)と比較的高額であっても、 充分なコスト削減効果が期待できることが明らかになっ ている<sup>16</sup>。



図5-3-11 発電設備導入に伴う環境性能の変化(ホテルにおける導入前後比較)



図5-3-12 発電設備の投資回収年数(ホテルの場合)

# 5-4 実用化へのシナリオ

# 5-4-1 初期導入市場の実態

一般市場への普及に必要な価格レベルに導くまでの初 期導入期は非常に重要である。初期導入が予想される市 場は分散電源市場であるが、それらも、容量範囲によっ て様々な特徴を有する。そこで、MCFC実用化へのシ ナリオを検討するにあたり、まず市場実態についての調 査を行った<sup>(1)-(5)</sup>。

1,000kW規模以下の民生業務用発電市場<sup>1)</sup>では、コー ジェネレーション設備として導入が進んでおり、その目 的は、主にエネルギーコストの削減にある。しかしその 中でも500kW級以下では、夜間停止の運転パターンが 多く、運転管理のための担当者も少ない。このため、経 済性の事後評価が十分になされていない場合が多い。熱 利用についても熱が余っているからと言う消極的な理由 が多い。これに対して500 ~ 1,000kW クラスの設備では、 しっかりした運転体制とフラットな負荷パターンにより、 概ね計画に近い経済性が確保されている。しかし、設備 のトラブルに対する改善要望は非常に強い。

1,000 ~ 10,000kW クラス<sup>(2)</sup>では、環境を意識した導 入と、熱利用による積極的な経済性追求が特徴的である。 また、ガスタービンも多用されている。業務用あるいは 産業用としてのコージェネレーションへの適用が多く、 稼働状況は全般的に良好であり、しっかりしたメンテナ ンス体制によって、トラブルは軽微なものに限られてい る<sup>(2)</sup>。

10,000kW以上の分野<sup>(3)</sup>では、工場内に設置する自家 用発電設備としてコージェネレーション設備の利用が多 く、発生する蒸気を工場の生産プロセスに利用する例も 多い。エネルギー多消費産業では、コスト削減のために、 電力の自給率を上げる事が基本的認識となっている。運 用はほとんどが24時間稼働であり、年間稼働率も高く、 設備トラブルはほとんど無い。

以上を踏まえ、MCFCの初期導入に当たっては、比 較的小規模のコージェネレーション設備の特徴を良く踏 まえた設備構成、性能目標の設定が重要となる。

### 5-4-2 導入の基本ステップ

新規電源が新たに市場に導入されていくためには、 「既存電源を大きく上回る機能・性能と同等以下のコス ト」、あるいは「同等の機能・性能と大幅な低コスト」 のいずれかが要求される。MCFCでは当面前者、発電 効率の高さと優れた環境特性の実現を目指して開発を進 めていくべきである。

MCFC導入シナリオとしてその基本的考え方を整理 した。多くの新規発電設備と同様に、MCFCは導入初 期の設備費が高い。一方で量産による設備費低減効果は、 特に電池素子における大量生産による低減が非常に大き いことが期待される。また、補機類(BOP)に関して も温度レベルが金属材料を適用できる領域にあることか ら既存の熱交換器などが適用でき、比較的低価格でシス テムを構成できる。このようなことから、MCFCの導 入は、その初期には設備費の高さをある程度補償できる 小容量電源としてニッチ市場からの導入が想定される。 その後、信頼性の向上や量産による設備費の低減と一般 的市場への普及拡大によって、より規模の大きな事業用 も含めた電源としての普及が始まるものと期待される。

表5-4-1に想定される基本的なMCFCの導入ステッ プをまとめた<sup>(2)</sup>。初期導入は、所要費用の絶対額が少な い自家用小型分散電源から進み、その性能の確認を経て、 より大型の事業用電源へと展開することが想定される。 このような過程にあって、MCFCは初期には既存分散 電源を凌駕する機能・性能の実証、本格導入段階におい ては既存分散電源と同等あるいはそれ以下の価格、発展 的導入段階にあっては大型事業用電源を上回る機能と価 格を実現させていく必要がある。

5-4-3 導入拡大への道筋

#### (1) プラント建設費低減

一般市場に受け入れられるためには、効率の高さはも とより、将来的な建設費低減も見通しておく必要がある。 近年電気事業における規制緩和に伴って発電設備の価格 低下が著しく、新型発電設備の目標価格は、より厳しい ものとなっている。目標とする建設単価を実現するため には、スタック本体の部品点数の削減、材料使用量の削 減、軽量化、高出力化、量産化など、電池本体に関する 一層のコスト低減が重要である。電池以外ではBOP機 器のコスト低減も重要である。比較的小容量のMW級 以下のシステムでは全体価格に占めるBOP費用の比率 が高くなるといわれている。さらにシステムの固定費だ けでなく、運転費用の低減も重要であり、効率はもとよ り、今後システム運用経験を積み重ねる事によって、保 守管理費は大きく改善されていくことが期待される。

#### (2) 寿命目標の段階的設定

信頼性すなわち電池寿命の確保も導入初期には重要な 課題となる。燃料電池発電設備は一般には数年で電池部 分を交換しながら数十年間運用することが想定されてい る。この場合、5-3-2項(2)で示したように初期導入期 のMCFC寿命は必ずしも当面の目標とされる数年であ る必要はなく、むしろ電池交換頻度を高めることによる 低価格化効果が期待できることも明らかになっている。 導入の進展に応じた段階的な性能目標の設定がむしろ重 要であり、市場規模の拡大に伴って寿命を延伸していく ことが望ましい。

#### (3) 導入施策の充実

初期導入期における金融上の助成、税制上の助成、補助金、規制緩和などの優遇制度は、その後の燃料電池の 普及・展開に非常に重要な役割を果たす。米国では、気 候変動プログラムの中で、燃料電池の設備容量に対して、 kW当たり1,000ドルの補助金が出されている他、州毎 にも優遇措置が整備されている。欧州でもコージェネレ ーション(combined heat and power, CHP)システム に対して発電電力量に応じて補助金が拠出されている。 我が国でも、既に同様の各種優遇措置が取られてはいる ものの、さらに充実されることが望まれる。

表5-4-1 想定される基本的なMCFCの導入ステッ	፟ <mark>≰本的な</mark> MCFC <b>の導入ステップ</b>
----------------------------	---

導入段階		初期導入段階		普及段階		
主目標		基本信頼性検証	כב	コスト低減・信頼性向上		
想定導入分野 想定発電容量		ニッチ市場	小規模分散電源	中規模分散電源	自家発電用電源	事業用電源
		~ 300kW級	数百kW級	数千kW級	数千~数万kW級	数万kW級以上
想定燃料		特殊燃料を含む あらゆる燃料	都市ガス バイオガス 廃棄物ガス 特殊燃料	都市ガス バイオガス 廃棄物ガス 特殊燃料	都市ガス LNG	LNG 石炭
-	発電効率					
重	熱利用					
蒗	環境影響度					
され	運用性					
3	信頼性	(基本信頼性)				
項	寿命					
	経済性					

# <sup>5-5</sup> これからの研究展開

MCFCの電池本体技術に関しては、発電面積1m<sup>2</sup>セ ルによって構成された10kW級スタックの初期性能とそ の長期安定性が、1万時間を越える発電試験によって実 証されている。MCFCの基本構造や主な材料仕様はほ ぼ決定され、電池の製造技術についても、電解質や電極 に対するテープ成形法、電極の還元雰囲気連続焼成法、 およびセパレータ板製造に対する大型精密プレス法や連 続自動溶接等、今後の大量生産に適する製造方法が開発 され、既に電池の製造に採用されている。すなわち、 MCFCに関しては基本的技術課題をほぼ解決したと判 断できる。しかし、基本的な技術開発の成功と、その技 術を広く社会に普及する商用化とは一般に大きな隔たり がある。MCFCは基本的な技術開発に成功したが、商 用化して広く社会に技術を普及させるためには、これま で以上の努力が必要である。目前の商用化に対する比較 的短期の課題、および広く普及するための比較的長期の 課題を纏めると、以下のようになる。

- ・電池生産工場における品質・生産性向上による徹底し た電池本体製造コスト低減
- ・他の競合技術に対抗できる MCFC 発電の新たな機能 創出
- ・超長期の電池性能安定性等、技術成熟による一層の性
   能向上

#### 1 MCFC 本体の品質・生産性向上

MCFC本体の製造コストは、製造機械の償却費等に 対応する固定費、および材料購入費等に対応する変動費 に区別できるが、MCFCの生産量が少ない場合には変 動費に比較して固定費が著しく高いことが大きな特徴で ある。したがって、MCFC本体の製造コストについて は大量生産による低減効果は極めて大きく、現状の製造 技術の踏襲によって、MCFCの経済性は充分に成立す ると考えられてきた。しかし、最近の発電機器の価格低 下は予測を上回っており、例えば、発電用大型ガスター ビンの本体価格は約3万円/kWであり、さらに低下す る傾向が窺える。すなわち、MCFC本体の製造コス ト・価格を従来の重電機器価格の常識の範囲内と想定し ていては、将来広く社会に普及できるとは到底考えられ ない。

MCFC本体の製造に必要な材料は比較的安価な炭酸 塩、ステンレス鋼、およびニッケル等であり、また製造 技術も極めて大量生産に適する方法であるので、MCFC の製造コストを予想以上に低減できる潜在的可能性は高 い。現状の製造工程を分析し、コスト増となる工程の見 直しと改善、および製造歩留まりの向上が必要である。 またコストを低減できる電池構造の追及が今後一層重要 になる。特に、電池製造メーカの考え方の切り替えが必 要であり、最も生産性向上が進んでいる家電メーカや自 動車メーカの経験を学び、今後は徹底した生産性向上に 対する研究と実践が必要になる。

品質管理・保証等による MCFC 品質向上は生産性向 上と共に、MCFC の商用化では重要である。最近の研 究開発の結果、MCFC の品質は以前よりかなり安定し たものを製造できるようになったが、まだ商用化段階と 言えるレベルではない。まして、品質向上と生産性向上 の両立は今後の課題であり、将来の MCFC の普及を左 右する最も重要な問題である。

#### 2 MCFC 発電の新たな機能創出

MCFC発電は従来、高効率発電、環境保全性、およ び使用燃料の多様性等を主な特徴・優位性として掲げ、 電池本体の開発を中心にして、システム設計とシステム 構成に必要な改質器やターボチャージャー等の補機類の 開発、石炭ガスや廃棄物ガスに対する適用性の研究が進 められてきた。当面の計画では、MCFCの燃料多様性 の特徴を生かし、中部電力(株)やトヨタ自動車(株)が 2005年に開催予定の愛知万国博覧会で生ごみ発電や廃 棄物発電を実証しようとしており、その後、中部臨空都 市国際交流特区の常滑市で空港の生ゴミなどを使いなが ら発電を継続することも予定されている。高効率発電、 環境保全性、および燃料多様性は MCFC 発電の大きな 特徴・優位性であるが、MCFCの利点はこれらに留ま らない。MCFC本体の開発に見通しが見えた現段階で は、初期導入を促進するため、MCFCの利点を最大限 に発揮させ、MCFCの市場を拡大する必要がある。

これまでの研究の結果、MCFC発電には炭酸ガスの

濃縮機能、カソードにおけるNO<sub>x</sub>の分解機能、アノード排ガスによる淡水の製造機能、良好な部分負荷効率、および迅速な負荷追従機能等を有することが指摘されている。

これらの利点のうち、炭酸ガスの濃縮機能(コラム5 参照)に着目した試験が計画されている。また、NOx の分析機能については4-2-2項(1)に示した。

水素や炭化水素系燃料が燃焼すると、必ず水が発生す るが、従来の発電システムでは、燃料に大量の空気を混 合するため、排ガスから水を抽出することは現実的でな かった。しかし、MCFC発電ではアノード排ガスの水 分濃度が極めて高いため、アノード排ガスから容易に淡 水を抽出することができる。淡水の製造機能は離島や乾 燥・砂漠地帯に発電所を立地する場合、極めて好都合で あり、役立つ。

MCFC 発電のシステム設計は、従来、主に定格運転 時の性能に注目して研究が行われてきた。最近になり、 ようやく部分負荷時の効率に着目した変圧運転システム の研究が開始されている。また、これまでの多くの単セ ルやスタック試験の経験から、MCFCの負荷追従速度 が極めて速いことが認識され、MCFCの非定常挙動に 着目した基礎研究が実施され始めている。さらに、国の プロジェクトで300kWの発電システムが開発されてい るが、この300kW発電システムの運転経験では、電池 本体を溶融塩の凝固温度約500 以下に降温しなければ ならない場合は極めて少なく、MCFCが発電しない場 合であっても、MCFC本体や改質器は運用期間中ほと んどが500 以上のいわゆる暖機待機状態に維持される ことが理解され始めている。MCFC本体を常温から炭 酸塩溶融温度約500 に上昇させるためには、かなりの 長時間を必要とするが、炭酸塩が既に溶融状態であれば、 MCFCの起動はかなり短時間で可能である。

すなわち、MCFC発電では、起動時間が短く、負荷 追従速度が極めて速く、さらに部分負荷効率が高いシス テム構成が可能と考えられる。このような特徴を有する 電源は需要地サイドの分散電源として理想的であり、例 えば、風力や太陽光発電との結合による極めて省エネル ギー効果の高い分散電源の出現、あるいは、送配電系統 の安定性に役立つ分散電源等、従来型の分散電源の欠点 を回避・補完することができるので、分散電源の導入量 を大幅に拡大することが可能になる。 MCFC発電における負荷変化時の動特性等に関して は基礎研究が開始されたばかりであるが、今後、理想的 なMCFCの分散電源を実現するために、新たな視点に 基づく本格的な研究開発が必要である。

#### 3 技術成熟による一層の性能向上

当面の目標である寿命5年の技術的見通しは達成でき たので、MCFCの大量普及に備え、今後は寿命を10 年に倍増することを目指すべきである。そのためには、 また基礎研究に立ち戻る必要がある。

電池電圧を向上させ安定に維持するためには、電極構 造が最も重要な役割を果たしており、電解質の占有状態 との関連性について、運転条件と電極/電解質の濡れ性 を考慮した電極設計技術を高度化しなければならない。 この設計においては電池寿命の観点からも、占有電解質 量の経時変化に対応して高電圧を維持できる電極製造技 術が必要である。さらに、今後多様な燃料に適用させつ つMCFCプラントを普及させて行くに当たっては、燃 料ガス組成や酸化剤ガス組成の違いによらず十分な寿命 が確保できるように、電解質との濡れ性と電極ミクロ構 造の適切なマッチングを図る必要がある。

電池寿命を倍増させるには、寿命に影響を与える要因 である電解質損失の低減とニッケル短絡抑制(発生時間 の遅延)がさらに重要である。電解質損失は、電極内部 での電解質分布の経時的変化を意味し、反応抵抗の増大 をもたらすほか、電極と電解質板と接するマクロポアが 電解質で満たされなくなり接触抵抗(内部抵抗)の増大 につながる。また、腐食生成物による内部抵抗の増大も 懸念される。電解質損失は、主に金属部材の腐食に伴っ て電解質が反応・消耗することに起因しており、高温腐 食をさらに抑制する技術や電気抵抗の小さい腐食生成物 に着目した技術開発が必要である。

ニッケル短絡は電解質への電極材料の溶解と電解質マ トリックス内での析出の両面から、さらに幅広く検討さ れるべき課題であり、電解質への溶出を現状よりさらに 低減できる新規カソード材料の開発、溶解度を低減する 新規電解質組成や添加物、析出を抑制する電解質マトリ ックス構造の開発をさらに進めていくべきである。

これらの基礎研究は、MCFCの普及拡大を支える重 要な技術であり、プラント製造法や運転法の開発に並行 して引き続き着実に継続して行かなければならない。

### コラム6: MCFC研究の草創期と実用化への期待

MCFCに着想したのは、石油代替エネルギーと して石炭ガス化発電の基礎研究が米国・欧州で開 始されたことによる。石炭ガス化発電は環境面で 優れているが、石炭直焚発電に比べて発電効率が 大幅に低下するためガスタービンと組合せる複合 発電とする必要があり、これがためには石炭ガス のクリーンアップが不可欠となる。このクリーン アップ方式としては水洗方式が一般的であったが、 これによる石炭ガス化複合発電の発電効率は、そ の当時のガスタービンの効率が30%程度であった ため石炭直焚発電と同等あるいは同等以下しか望 めなかった。この問題解決のためには、高温の乾 式クリーンアップ方式を開発するか、ガスタービ ンを遙かに上回る発電効率を持つ新しい発電方式 を開発する必要があった。そこで、発電効率50% 以上の期待が持て、各種ガスが燃料として使用可 能な MCFC の調査・研究に着手することとした。

MCFCは、1920年頃ドイツにおいて研究が行わ れたが、電解質の漏れ、電極の腐食などの問題が 解決されず研究は中止されていた。当研究所が基 礎研究段階から研究を開始したのは1980年代初め のことである。当時、基礎研究は、工業技術院大 阪工業技術試験所 (現(独)産業技術総合研究所関西 センター)ほか各重電メーカーの研究所で開始さ れていた。そこで各機関と個別に共同研究契約を 結び、当研究所の研究員が各研究所に出向き、電 極面積5cm角程度の単電池段階から試作・試験し、 開発研究をスタートさせた。その後、電極面積を 徐々に拡大し、電極面積30cm角の単電池を10枚積 層した1 kWのMCFCを製作できる段階となり、 当研究所横須賀研究所構内に1kW級電池試験装置 を設置し、各種試験を実施し発電用としての利用 に自信を持てたのである。この結果が、60 cm角単 電池による10kW級スタックの要素技術開発などを 経て、1,000級発電プラントの実現に向けたムーン ライト計画での実用化試験に繋がることとなった。

また、PAFCの経験から、プラント構成要素の 基礎研究が重要であるとの認識のもと、電池本体 以外の周辺機器の研究開発を基礎的段階から行う ため、MCFC発電システム技術研究組合の設立が 促されたことも忘れてはならない。1999年から 2000年にかけては、中部電力川越火力発電所構内 のMCFC研究組合川越発電試験所でプラントの実 証と運転研究が行われた。世界初となる1,000kW 級出力の達成と約5,000時間に及ぶ運転実績を挙げ た際には、MCFC開発に係わってきた一人として 格段の感激を覚えたものである。

これらの結果を受けて、引き続き早期実用化を 図るための国の研究開発が進められており、民間 においても中部電力(株)、トヨタ自動車(株)などで実 証研究が行われている。これらの有効な成果が一 日も早く世間に認められ、市場が広がることを期 待している。

一方、国外でもMCFCの早期実用化の研究が展開されており、既に内部改質型MCFCのフィール ドテストが開始されつつある。我が国でもかつて 関西電力 / 三菱電機が開発を進め、長期実証試験 にも成功した実績がある。特に、分散型電源用と しての利用に魅力を有しており、その実用化の可 能性も十分に感じられたものである。

さて、MCFCを早期に市場に導入するには、ど のような方策が考えられるであろうか。最も重要 な経済性については、高コストに繋がる特殊な材 料・製造技術は見当たらないので今後のコスト低 減努力に大いに期待するとして、その他の課題に ついて考えてみたい。

先ず市場導入を急ぐとすれば、燃料は天然ガス 利用に限定して開発を進めるべきと考える。次に 他の燃料電池とMCFCの違いをもっと強調すべき である。すなわちMCFCは、1発電専用機として 50%以上の発電効率が期待でき、排熱利用面での 制約がない。2中小容量分散電源として任意の容 量選択が可能で立地的制約がない。3負荷変動特 性など利便性や環境性に優れている。

そして、性能向上などの研究開発の重要性を十 分に認識しつつも、それ以上にフィールドテスト を積極的に進め、電源としての優位性と既に実用 段階にきていることについて、社会で確固たる認 知を得る努力をすべきと考える。

我が国で、MCFC研究を発想し中核を担って先 導的に研究を推進してきたのは当研究所である。 この優れた研究を支える研究者の健闘に期待する ところ大である。

(電力中央研究所

名誉特別顧問、前専務理事 上之薗 博)



# もうひとつの高温型 燃料電池 SOFC

固体酸化物形燃料電池(SOFC)はMCFCより高温の700~1,000 で動作する燃料 電池で、国のプロジェクトでも開発が進められている。電池構造、材料、運転温度な どについて様々なバリエーションが提案されており、MCFCより高効率となる可能性 がある。当研究所では、1,000 動作、オールセラミックス製で、低コスト化が期待 できる、独自の電極支持型SOFCを開発中である。これはこれまで蓄積してきた材料 技術に基づくものであり、先頃のセラミックスインターコネクタの開発によって大き く進展し、小型のスタック試験にまで至っている。今後、大型化を進めていく予定で ある。 付録 もうひとつの高温型燃料電池 - SOFC 目 次

横須賀研究所 エネルギー材料部 主任研究員 山本 融 エネルギー機械部 主任研究員 森 則之 エネルギー材料部 主任研究員 伊藤 響

付-1	SOFC <b>の特徴と位置づけ</b>	. 99
付-2	<b>基盤技術への取り組み</b>	104



山本 融(1993年入所) これまで、SOFCに関する研究に携わり、 電池を構成する材料の開発と材料の劣化メカ ニズムの解明に取り組んできた。今後は、 SOFC発電技術の実用化に向け、電池の運転 評価技術ならびに性能評価手法の開発に取り 組んで行きたい。

(付-1-1、付-1-2執筆)



森 則之(1987年入所) 高温ガスタービン用セラミック燃焼器、セ ラミック静翼、SOFCセル・スタックなどの 開発、SOFC発電システムの性能解析に関す る研究を行ってきた。現在、ガスタービンの モニタリング技術に関する研究を行っており、 その成果の実用化を目指す。

(付-1-3執筆)



伊藤 響(1990年入所) これまでSOFC関連研究では、製造コスト 試算、燃料極材料の長期安定性向上を中心と する構成材料の研究、ならびに材料面からの スタック化技術開発に取り組んできた。今後 は、当研究所が提案する燃料極支持形SOFC の実現を目指し、引き続きスタック化技術の 開発に取り組んで行きたい。

(付-2執筆)

# <sup>付録-1</sup> SOFC の特徴と位置づけ

### 付-1-1 SOFC の特徴

SOFCは、セラミックスの電解質を使用し、燃料電池 の中では最も高い温度領域(700~1000))で作動する ことから、高効率な発電システムの構築が期待されてい る。SOFCは、セルスタック構造の違いから、平板構造 と円筒構造に大別されるが、基本的にはアノード(以降、 燃料極)、カソード(以降、空気極)、および電解質から なるセラミックス製の単電池(単セル)が、インタコネ クタ(MCFCのセパレータに対応する。SOFCでは、こ のように呼ばれることが多い)を介した連結構造を有す る。(**付図**1-1)

SOFCの作動温度は、一般に電解質の種類と形状によって決まる。現在、技術的な成熟度が高く一般的に用いられているイットリア安定化ジルコニア(YSZ)の場合、作動温度は1000 である。その特徴を以下にまとめる。 1 セラミックスを用いた全固体での電池構成が可能な ことから、高温動作が可能な多様な電池形状をとることができる。

- 2 高温動作が可能なことから、高出力密度と高い発電 効率が期待できる。
- 3 電池反応が容易に進行することから、貴金属を使った触媒電極が不要になるとともに、内部改質が可能なことから、水素以外にも、天然ガス、石炭ガスなども直接燃料にできる。
- 4 電解質をはじめとする材料が固体であるため、腐食 や電解質の散逸が無く、長期間安定した運転が可能と なる。
- 5 高温排熱を改質反応やガスタービンの駆動にも有効 に使えるため、高い発電効率のコージェネレーション システムやコンバインドシステムの構築が可能となる。 これらのうち、固体であることに起因する1、4の特 徴はMCFCには無いものであり、MCFCでは構成材料 やスタック構造などのコンセプトが確立されているのに 対し、SOFCでは、その構成材料、電池構造などについ



(産業技術総合研究所のホームページなどより)

て様々な方式が試みられている。SOFCはこれまでの国 内外の研究開発により、電池本体の技術完成度は着実に 高まっており、高発電効率システムとしての早期の実用 化が期待されている。

### 付-1-2 外部機関の動向

SOFCの開発では、米国のWestinghouse Electric社 (現 Siemens Westinghouse Power 社, SWP社)が20年 以上にわたり、定置用としての開発を中心に世界をリー ドしてきた。SWP社は、円筒軸方向にインタコネクタ を配置した縦縞型と称される円筒型 SOFC の開発を進め ている。SWP社は、1997年に日本で東京ガスと大阪ガ スと共同で実施した25kW級常圧型モジュールの発電試 験の後、1997~2000年には、オランダにおいて、 100kW級常圧型のコージェネレーションシステムの実 証試験を実施している。その後、このシステムは、ドイ ツに移設され、2万時間以上の累積運転時間を達成した。 また、2000年には、米国内において、世界で初めてと なる 200kW 級加圧型 SOFC とマイクロガスタービンの ハイブリットシステムの実証運転に成功している。現在 は、加圧型 SOFC マイクロガスタービンハイブリットシ ステムの商用化に向けた開発研究を進めている。

当初、SOFCの開発は、定置用の電力会社向けを想定 して始まったが、現在では様々な用途への適用拡大も指 向されている(**付表**1-1)。ここ数年、世界的には、数 kW ~ 数10kW クラスの小型定置用 SOFC の研究開発を 中心とした流れがある。カナダのGlobal Thermoelectric 社や、ドイツのSulzer Hexis社などは、急速に家庭用や 小型定置用の平板型 SOFC の研究開発を進めている。こ れらの電池は、電解質の基板上に空気極と燃料極を形成 した自立膜(電解質支持)平板型電池と、ガス流路を加 工した金属製のインターコネクタから構成されている。

米国では、SECA (Solid State Energy Conversion Alliance) プログラムと称して、様々な用途に適用可能 な小型スタックを開発し、大量生産による低コスト化を 図ることを目的に、国家的規模で研究開発を進めている。 SWP社は、商用化を目的に小型定置用ではFuel Cell Technology社と、運輸分野ではFord社とともにSOFC の高出力・低コスト化を目指している。

我が国においては、1981年度からムーンライト計画 にとりあげられて、研究開発が進められている。1989 年度からは、NEDOの研究開発計画として数100W級の 電池本体の研究開発が行われ(I期)、その後1992年度 から2000年度まで、燃料電池本体のコスト低減と信頼 性確立に重点を置いた開発が行われてきた(第日期)。 この中で、東陶機器(株)、新日本製鐵(株)、九州電力(株) は、共同で、SWP社と同様の円筒型SOFCの開発を実 施してきた。また、三菱重工業(株)と中部電力(株)は、 共同で開発を進めている平板型(MOLB Mono Block Layer Built型)SOFCスタックによる熱サイクル試験 や負荷追従性の検討を進めた。当研究所も低コスト化の

機関名	目標時期	開 発 状 況
中部電力 + 三菱重工業	2005	2004年まで50kW級システムの評価
関西電力 + 三菱マテリアル	2007	2006年まで数kW低温作動型システムの開発
電源開発 + 三菱重工業	2006	円筒横縞型100kW天然ガス利用システム
JFEエンジニアリング	2004~2005 (試験用販売)	Fuel Cell Technology社製Flat-plateセルまたはSWP社製縦縞円筒形利用、 数kW~MW級までをラインアップ、 5 kW級で300kg、170×70×60cm程度
東陶機器	2004	NEDOプロでの10kW級システム、 NEDO以外でマイクロチューブ型を開発
京セラ	2003	電極支持型による家庭用システム
東邦ガス	2005	スカンジア安定化ジルコニア電解質の単セルを用いた商品化を大手電機と 共同開発
Sulzer Hexis社	2001以降	電極支持型単セル + 金属セパレータ使用950 作動、電気 1 kW + 温水 3 kW 家庭用システム
Siemens Westinghouse Power社(独、米)	2004	縦縞円筒型構造、250kW~ 1 MW級SOFC + MGT加圧ハイプリッドシステム 実用化、2010年までに低コスト化
Delphi社 ( 米 )(+ BMW)	2006 ~ 2010	商用・軍用車載用補助電源、固定用電源 5 kW級で70kg/44L
Global Thermoelectric社	2007	低温作動電極支持型、Delphi社にスタック供給
Acumentrics社(+住友商事)	2004	円筒マイクロチューブ形、家庭・飲食店、通信事業用1~250kW級システム
Rolls & Royce	2007	電極支持型で1MWSOFC+MGT

付表1-1 各開発機関のSOFC開発状況

観点から、安価な粗製ランタンを用いた電池構成の可能 性の検討を実施した。

この成果を基に2001年度から4年間の計画で、東陶 機器が円筒型を、三菱重工業(株)と中部電力(株)が平板 型スタックを用いて、実用システムに適用できる高信頼 性、拡張性および経済性を有する熱自立モジュール(10 数kW級)の開発が進められている(第111期)。また本 計画では、SOFCの使用範囲の拡張を目指した適用性拡 大に関する要素研究も、三菱重工業(株)ならびに東京ガ ス(株)によって行われている。さらにNEDOは2004年 度から、新たに市場導入を念頭においた各種SOFCシス テム開発と、フィールド試験を含めたSOFC性能評価技 術の開発を実施する予定である。

SOFCの実用化に向けた課題としては、材料開発も含めての電池性能の向上、分散電源用途に適用可能なセルスタックの大出力化、それらを低コスト・高信頼性をもって実現可能な基本システム構成の検討などが挙げられる。

付-1-3 SOFC 発電システム

SOFC発電システムは、MCFCと同様に多様な燃料を 利用でき、また電池からの高温排ガスを用いての複合発 電や熱併給が行えるので、様々なシステム構成が提案さ れている。ここでは、天然ガスを利用して、高温排ガス で複合発電を行う場合と、熱併給を行う場合の各システ ム、ならびに石炭ガスを利用する場合のシステムを例示 しながら、SOFC発電システムの特徴を紹介する。

#### (1) 常圧熱併給システム

まず、当面の導入形態と考えられる常圧システムとし て、熱を併給するシステムを、**付図**1-2に例示する<sup>(1)</sup>。 付図1-2は、天然ガスを電池内部で改質する常圧作動の SOFCを用いて、0.9MPaの飽和蒸気を発生するシステ ムである。熱回収量は回収を行う媒体温度により変化し、 媒体を蒸気とするよりも温水とした方が熱回収量を多く できる。しかしながら、高温の媒体ほど熱としての利用 価値は高くなるので、ここでは二重効用吸収式冷凍機が 駆動できる条件、すなわち冷房需要にも対応できる熱回 収条件で性能解析を行っている。

このシステムでは、電池の電気出力が加圧時よりも低 下し、空気供給にブロワ - 動力が必要であるため、発電



#### 付図1-2 熱併給を行う内部改質型常圧作動SOFC発電 システムの例(天然ガス燃料)

効率は40%程度となった。また回収できる熱量は約30% であり、総合効率は約70%との結果が得られた。

付図1-2のシステムでは、SOFCの運転条件である電 池入口温度、燃料利用率、電流密度を変化させることで、 電気出力および熱回収にかかわる効率が変化する。その 検討結果を、付図1-3に示す<sup>(2)</sup>。熱併給を行うSOFCシ ステムの発電効率は最大50%程度まで見込めることが わかる。このようにSOFCでは、既存の発電装置よりも、 高い発電効率を維持しつつ、さまざまな熱回収率でシス テムを構築できる可能性がある。

#### (2) 内部改質型加圧発電システム

次に、より高効率発電を目指した将来型のシステムとして、天然ガスを燃料とし、SOFCと膨張タービンで発電を行うシステムの構成例、ならびにシステム性能の解析結果を付図1-4に示す<sup>(1)</sup>。このシステムでは、電池内部で天然ガスを改質し、加圧で運転できるSOFCを想定している。性能解析では構成、運転条件などの最適化が図られていないが、約60%のシステム効率を期待できるとの結果が得られている。



付図1-3 熱併給を行うSOFC発電システムの性能<sup>(213)</sup>



#### 付図1-4 内部改質型加圧作動SOFC発電システムの例 (天然ガス燃料)

また、図から分かるように、MCFC 発電システムと 異なり、SOFC では電池からの排気ガスをリサイクルす る必要がない。それは、電解質中の電荷移動体となる酸 素を大気から供給でき電池排ガスを再利用する必要がな いこと、SOFC の作動温度(900~1,000)は、燃料改 質に適した温度であり電池内部で直接燃料を改質するこ とで電池冷却の効果が期待できること、が理由である。

#### (3) 外部改質型加圧発電システム

システムにおよぼす内部改質の効果を例示するため、 外部改質を行った場合のシステムを付図1-5に示す(3)。 付図1-5には、燃料供給、SOFCの出入口ガス温度など の条件を付図1-4と同一とし、解析を行った結果も示す。 外部改質を行うシステムでは、内部改質の場合よりも電 池冷却に大量の空気が必要となるため、空気供給にかか わる圧縮機での消費動力が増え、かつ膨張タ - ビン入口 でのガス温度が著しく低下する。このため圧縮機動力を 差し引いた膨張タ - ビンからの電気出力は著しく低下し、 ひいてはシステム全体の効率を引き下げることになる。 もし、付図1-5でカソ-ドガスのリサイクルを行えば、 外部から供給する空気流量を大幅に減らすことができ、 内部改質の場合とほぼ同じシステム効率が得られる。し かし、システム構成機器は増えることとなる。以上から、 SOFCでは、膨張タ-ビンと組合せ、かつ電池内部で燃 料改質を行うことにより、高効率のシステムを比較的単 純な構成で構築できることがわかる。

#### (4) 石炭ガス化複合発電システム

最後に、石炭ガスを燃料とするSOFC発電システムの 性能解析結果を紹介する。石炭ガスを燃料とする場合に は天然ガスと異なり、燃料改質が不要となるので、内部 改質による電池冷却ができない。したがって、外部から の流入空気量を減らしてシステム効率を高めるために、



#### 付図1-5 外部改質型加圧作動SOFC発電システムの例 (天然ガス燃料)

カソードガスのリサイクルによる電池冷却が必要となる。 石炭ガス利用のシステム構成例を**付図**1-6 に、性能解析 の結果を**付表**1-2 に示す<sup>(4)</sup>。図は微粉炭を空気でガス化 し、生成したガスを、高温ガス精製(乾式)システムで 脱じん、脱硫するシステムである。また、発電出力は、

#### 付表1-2 石炭ガスを燃料とするSOFC発電システムの 性能

石炭供給方法		微粉炭	微粉炭
		土刈城区	至余败区
ガス化剤		空気	酸素
ガス精製方式		乾式	湿式
発電端効率( HHV基準 )( % )		58.6	60.3
送電端効率( HHV基準 )( % )		53.4	53.2
出力 (%)	SOFC	28.1	27.8
	ガスタービン	13.9	17.2
	蒸気タービン	16.6	15.3
	所内動力	- 5.2	- 7.1

SOFC、ガスタービン、蒸気タービンから得られる。表 では微粉炭を酸素でガス化し、湿式でガス生成した場合 の性能もあげているが、いずれのシステムでも50%を越 える送電端効率が期待できる。

以上、SOFC発電システムの可能性について紹介した。 SOFC発電システムを実現するためには、電池以外に燃料、空気を電池入口温度まで予熱する高温熱交換器が不可欠となる。数百kW級のSOFC発電システムを実証したSWP社では、セルが円筒形状であることを活かし、高温熱交換器を電池と一体構造とすることで、この問題に対処している。一方、セルが平板形状のSOFCでは、別途高温熱交換器を設備する必要があるため、SOFC本体とともに高温熱交換器の開発が必須と考えられる。



付図1-6 石炭ガスを燃料とするSOFC発電システムの例

# 付録-2 基盤技術への取り組み

本節では、当研究所が開発を進めている燃料極支持型 SOFCに関連するこれまでの研究成果ならびに試作スタッ クの発電試験結果について紹介する。

### 付-2-1 SOFC 研究開発の目標

当研究所では、1988年にSOFC発電に関する調査を 実施し、高効率発電システムへのSOFCの適用とその実 現には、1高温(1,000)作動、2全セラミックス製、 3低コスト製造技術の確立、を満足する必要があると結 論づけ、当研究所におけるSOFCの開発目標とした。

第一の目標である高温作動は、電解質が良好な導電性 を示す温度であることと、より高効率な発電システムの 構築には有効利用できる排熱が高温の方が有利であると の考えに基づいている。そして、この作動条件を満足す るには、金属よりも耐熱性に優れたセラミックス系材料 を適用していくという使用材料上の制約が加わって、第 二の目標となった。また、当研究所が SOFC の研究開発 に着手した当時、SOFC発電の実現性を示した米国 Westinghouse Electric社(当時)製3 kW級スタック や旧電子技術総合研究所製0.5 kW級スタック等は、製 造コストが極めて高く、SOFCの実用化には少なくとも 製造コストを大幅に低減することが課題になっていた。 そこで、SOFC発電の実用化に必要と考えられた低コス ト化を第三の開発目標に加えることとした。当研究所で は、SOFCの製造コストに関しては、2種類の構造の SOFCを三つの製造方法で量産した場合の各種費用 (原・材料費、設備費、光熱費、労務費等)を試算して、 低コスト製法を明らかにするとともに、原材料費の削減

や出力密度の向上が低コスト化に必要であるとの指針を 得ている<sup>(1)</sup>。

以上より、当研究所では、SOFC用セル材料の研究に 重点を置きながら、セラミックス湿式法等の低コスト製 造法の適用が容易で、比較的高い出力密度が得られると 考えられた電解質支持型平板SOFCのスタック化技術の 開発に着手した。

### 付-2-2 セルの高性能化技術

SOFC単セルの高性能化は、セル材料、セル構造、作 製方法に関する最適化を進め、これらのベストミックス によってはじめて達成できる。

#### (1) 燃料極ミクロ構造の改良203)

研究開発の初期段階における解決すべき最大の課題は、 十数時間で発電が不可能な状態にまでなる性能低下現象 であった。特に、単セルに流れる電流を大きくすると、 この性能低下は顕著に現れた。そこで、各電極について、 カレント・インターラプション法を用いた発電時におけ る電極特性の解析と発電前後における各電極のミクロ構 造変化の顕微鏡観察を実施した。その結果、空気極には 問題がなく、燃料極の劣化が原因であることが分かった。

この劣化は、燃料極材料に用いるニッケル(Ni)粒子 の熱凝集による材料全体の緻密化と電流パス切断の進行 が原因である。そこで、これらの現象を抑制するために、 燃料極に用いるYSZ粒子を従来の微細な粉末粒子から 粗・微二種類のYSZ粉末粒子に変更し、**付図**2-1に示 すような概念のミクロ構造を提案した。このミクロ構造



付図2-1 当研究所が開発した燃料極のミクロ構造概念

では、粗・微YSZ粒子によって燃料極の骨格を形成し、 特に粗YSZ粒子間に出来る粒間細隙にNi粒子と気孔を 分散させて、連続的なつながりを維持している。また、 微YSZ粒子は、粗YSZ粒子同士の接着性や燃料極と電 解質との密着性の向上を果たす粉末である。

試作した燃料極材料を電解質板に塗布し、焼き付けて 電解質支持型SOFC単セルの燃料極とし、燃料極におけ る電圧損失の変化を測定した。付図2-2には、同一条件 下で測定した新材料と従来材料の電圧損失の経時変化を 併せて記した。新材料は従来材料と同等の性能を有して おり、また長期安定性については大幅な改善がみられて いる。ただし、流れる電流を大きくする(電流密度でお おむね1.2A/cm<sup>2</sup>以上)と、劣化が進行することもわか った。



付図2-2 当研究所が開発した燃料極の電圧損失の経時変化

#### (2) 燃料極支持型 SOFC の提案

当研究所では、直径40 mm のYSZ電解質板を用い た電解質支持型構造の単セルにより、開発した電極材料 の性能評価を行うとともに、単セルの大面積化を進め<sup>4)</sup>、 最終的にはスタックの基本構造となる単位セルを開発し た(ここでは電解質と両電極から成るセルを単セルと呼 び、これにインターコネクタを付けたセルを単位セルと 呼んで区別する)。本単位セルでは、利用率・熱サイク ル特性等を評価するとともに、材料やスタック構造に関 する課題の抽出を行った<sup>(506)</sup>。その結果、取り出せる出 力に限界があり、高い加工精度が必要な部品点数が多い 等の課題が見出された。

そこで、新たに燃料極支持型構造を提案<sup>7)</sup>し、その 開発に着手した。本構造では、**付図**2-3に示すように空 気極よりも電気抵抗が低い燃料極で基板を作製し、これ



#### 付図2-3 当研究所が提案する燃料極支持型SOFC (単位セル基本構造)

を電解質とインターコネクタ(I.C.)で包み込むように 直接成膜し、さらに電解質膜上に空気極を成膜している。

この構造により、各部材での抵抗損失や燃料極/I.C.間 の接触抵抗を最小限とし、電解質の密着効果によって電 極反応場を増大させて出力の向上を目指した。また、当 所開発の燃料極材料<sup>308)</sup>で作製した基板は、良好な熱伝 導性が期待でき、強度と安定性にも優れるため、単セル での温度分布を小さく抑えられ、セル破損も起こりにく いといった特長がある。

#### (3) 燃料極支持型単セルの試作と初期特性

燃料極基板への電解質の成膜では、低コストな成膜技術として陶磁器等で用いられる釉薬(うわぐすり)技術を応用したスラリーコート法を用い、緻密な膜を成膜することに成功した<sup>(7)</sup>。付図2-4では、同一材料で作製した電解質支持型、および燃料極支持型単セルの発電性能を比較して示している。新たに提案したSOFCは従来のSOFCに対して3倍以上の出力取り出しが可能であり、長時間安定性についても、従来のセルでは性能低下が生じた高い電流密度(1.2A/cm<sup>2</sup>程度)で通電しても、安定した発電状態を維持した。



付図2-4 電解質支持型セルと燃料極支持型セル (インターコネクタなし)の発電特性

# 付-2-3 燃料極支持型 SOFC のスタック化 技術

#### (1) インターコネクタ成膜方法の確立

当研究所が提案する燃料極支持形 SOFC において、多 孔質燃料極基板表面上への緻密な I.C.の成膜は、単セル 構造の成立性を左右するキーテクノロジーである。しか し、高温作動型 SOFC において I.C.材料あるいはセパレー タ材料として用いられるランタンクロマイトは、緻密に 焼結させることが難しく、またスラリ - コート法で成膜 する際の熱処理工程で燃料極材料との間で進行する化学 反応により、緻密膜を得ることが不可能であった。そこ で、このような化学反応の進行を抑制し、かつ電気的に 低抵抗で熱膨張挙動が整合する材料を中間層として見出 し、**付図**2-5 に示すような緻密な I.C.膜を成膜すること に成功した<sup>(9)</sup>。

### (2) 試作単位セルの発電性能評価(9)

I.C.膜を成膜した単位セルの発電特性を測定した結果



付図2-5 スラリーコート法で成膜した緻密インタ ーコネクタ膜

(付図 2-6) 開回路電圧(以下、OCV)が理論値(約 1.07 V)と一致したことから、電解質やI.C.膜でのガス 漏れは生じていないことが確認された。また、電流密度 が2.0 A/cm<sup>2</sup>のときに最高出力密度0.93 W/cm<sup>2</sup>が得ら れた。各部材での電圧降下を解析した結果、I.C.膜/燃料 極間および燃料極/電解質間での電圧降下はほぼ同じ値 で全体に対する割合も小さいが、空気極/電解質間での 電圧降下は、電圧降下全体のほぼ2/3を占めていた。ま た、電流密度1.2 A/cm<sup>2</sup>時での長時間安定性を確認した 結果、測定開始初期に空気極の酸素不定比量の緩和現象 および700時間経過以降に空気極の劣化によるセル電圧



(b)連続試験(1.23 A/cm<sup>2</sup>)におけるセル電圧、インターコネクタでの電圧損失の変化

付図2-6 インターコネクタを成膜した燃料極支持型SOFCの発電特性
の低下が観察されたが、インターコネクタの経時劣化は 確認されなかった。さらに、インターコネクタに用いら れるランタンクロマイトは、一般に、高温で高加湿雰囲 気下での分解が懸念されているが、開発したインターコ ネクタには性能低下がみられなかった。

#### (3) スタックの試作と発電試験

現在、試作しているスタックは、セパレータ板を介し て単セルを接続する平板形や金属フェルトを挿入して単 セルを接続する円筒形と異なり、**付図**2-7のように空気 極材料で作製した接続部材でI.C.付き単セルを連結して 構成した。これは、空気流路の確保、同一部材<sup>(10)</sup>の接 合による接触抵抗の低減、多孔性部品の挿入による柔構 造化と熱応力等の緩和を目的としており、シールやマニ ホールド部材には雲母系ガラスセラミックス<sup>(11)</sup>を適用 して、スタックの全セラミックス化を図った。

これまでに、3セルスタックを試作して、発電試験を 実施した<sup>(12)</sup>。使用部材を**付表**2-1に、発電特性を**付図** 2-8にそれぞれ示す。1000 において、燃料ガスとして 加湿水素を、酸化剤ガスとして空気を、それぞれ供給し



付図2-7 3セルスタックの概念構造と試験前スタック (付図2-1に試験前スタックの写真を図示した)



付図2-8 試作した3セルスタックの発電特性 (単セル換算値、本研究では2式のスタッ クを試作して、それぞれの発電性能を評 価した。)

た場合、OCVが理論値と一致したことから、電解質・ I.C.膜ならびにガスシール部分でのガス漏れはなく、構 造の健全性が確保されていることが明らかになった。ま た、性能評価試験用小型スタックではあるが、約0.5 W/cm<sup>2</sup>(単セル電圧0.7V時)以上の出力密度が得られ、 1,000 作動のスタックでの発電性能としては、近年公表 されている他機関のものよりも高い出力密度が得られた。

以上、当所独自のSOFC技術によって、高性能な小型 スタックを再現性良く作製でき、1000 作動・全セラ ミックス製SOFCの実現に対する目途が得られた。今後 は、スタック構造の改良、ならびに単位セルの大面積化 を進めて、実用レベルでのスタック技術を確立して行く。

付表2-1 3セルスタックに使用した部材

_			
	部材名	構成する材料	備考
	燃料極(多孔質基板)	Ni-YSZサーメット	当所開発
単わ	電解質(緻密膜)	8YSZ	市販品
ル	空気極(多孔質膜)	ランタンマンガナイト	当所開発
	インターコネクタ(緻密膜)	ランタンクロマイト + 中間層	当所開発
接網	。 続部材(多孔質基板)	ランタンマンガナイト	当所開発
終	端部材(多孔質基板)	Ni-YSZサーメット + インターコネクタ膜	当所開発
シ・	ール・マニホールド部材	雲母系ガラス・セラミック	市販品

### お 参事 横須賀研究所副所長 **阿部 俊夫**



ジェームズ ワットが蒸気機関を発明したのが1782年 であり、1901年には我国最初の蒸気自動車の販売広告 が新聞に掲載されました。しかし、1876年にオットー により発明されたガソリン機関は急速の進歩を遂げ、 1913年、ヘンリー フォードがガソリン車の大量生産に 成功してから、蒸気自動車や当時の電気自動車はまたた く間に姿を消しています。

蒸気機関は自動車分野ではガソリン機関に駆逐されま したが、汽車、船舶、および発電用蒸気タービン等の大 型熱機関として発展し、また、自動車におけるガソリン

機関は20世紀に社会趨勢や人々の要求に支えられ、性能・耐久性・量産技術・低コスト化の観点 から飛躍的に発展しました。

一方、燃料電池の発電原理が最初に提唱されたのは、1839年、イギリスのグローブ卿によって であり、オットーのガソリン機関の発明以前でありますが、燃料電池の実現性を議論できるように なったのは、20世紀後半であります。燃料電池を実現するためには、電極反応の基礎理論や多孔 質材料技術等の発展を待つ必要があり、20世紀初頭に既に民生用として実用化が図られた蒸気機 関やガソリン機関等の内燃機関に比較し、燃料電池の開発は大きく遅れました。このため、燃料電 池が既に技術的完成域に達している内燃機関に、性能面および経済面で対抗し、民生用として発 展・普及することは容易な事ではありません。

燃料電池は最初極めて特殊な用途として開発され、宇宙船電源としてのアルカリ形燃料電池が使 用されました。一方、民生用としては、最初にりん酸形燃料電池が実用化され、普及しましたが、 その発電効率が電力系統の需要端効率より低いため、用途が限定され、期待ほど大きく普及してい ません。最近では、将来の水素社会をイメージした自動車用の固体高分子形燃料電池(PEFC)が ブームとなり、燃料電池技術に対する社会的認知を得る観点から大きな前進であると言えます。

高効率な発電システムとして最も期待されていますのが、高温型燃料電池である溶融炭酸塩形燃

料電池(MCFC)と固体酸化物形燃料電池(SOFC)であり、本書では主にMCFC技術を紹介しました。SOFCは作動温度が最も高く、その実用化が難しい技術と考えられていますが、性能および耐久性の観点から優れた潜在性を有しますので、将来極めて魅力ある発電技術に発展する可能性があります。

MCFC発電は分散配置型中小電源あるいは集中型火力発電技術として、当研究所が力を入れて いる研究課題です。研究開始後、約20年が経過しましたが、この間、国家プロジェクトと連携を 取りつつ、電力各社や電池製造メーカの協力を得て、多くの単セル試験やスタック発電試験に基づ く電池性能の評価・予測技術、および電池材料・構造最適化技術等の研究を推進してまいりました。 最近、MCFC発電は、多くの関係各位のご努力により、ようやく実用化の見通しが明らかになり 始めていますが、MCFC技術が拠点となり、高温型燃料電池が性能・経済面で従前の内燃機関に 対抗し、社会に広く普及できるかは、むしろこれからが重要な時期であり、信頼性の向上や徹底し たコスト低減に対して、一層格段の努力が必要です。

「省エネ・省資源社会の構築」は我国の必須の課題であり、その構築に向けて、燃料電池技術が 重要な一翼を担うためには、これまで以上に関係各位が努力し協力しあうことが大切です。当研究 所は高温型燃料電池技術を是非とも実現させるため、今後とも一層努力する所存です。関係各位の ご指導、ご協力を心から御願い致したいと思います。

最後に、本書を纏めるにあたり、新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)および溶融炭 酸塩型燃料電池発電システム技術研究組合(MCFC研究組合)の受託研究成果、中部電力(株)、石 川播磨重工業(株)(IHI)(株)日立製作所、三菱電機(株)との共同研究成果を使用させて頂きました。 また、MCFC研究組合殿、中部電力殿、およびIHI殿には、本書の分担執筆をお願いしました。本 書が高温型燃料電池技術の啓発・普及に少しでも役立つことを期待しつつ、付記して謝意を表する 次第です。

# 引用文献・資料等

#### **第**1章

- W. R. Grove "On a Gaseous Voltaic Battery" Philosophical Mag., Vol. 121, pp417-420 (1842)
- (2) 麦倉、浅野「各種燃料電池の性能と要因分析」電気学会論文誌 B、Vol. 120-B、pp885-892(2000)

#### **第**2章

2-1

- (1) Mamantov, Braunstein editor "Advances in Molton Salts Chemistry Vol.4 " Plenum press (1981)
- (2) Fuel Cell Seminar Abstractsなど
- (3)「燃料電池発電システムの分散配置技術」電気学会技 術報告 第711号、燃料電池発電分散配置技術調査専門 委員会(1999)
- (4)「前期開発成果とその1000kWパイロットプラントへの適用」第25回MCFCセミナー、MCFC研究組合(1995)
- 2-2
- (1)「溶融炭酸塩型燃料電池発電システム技術開発成果」MCFC研究組合(2000)
- 2-3
- (1) 平成12年度「高温形燃料電池発電技術」研究開発成果 報告会 講演要旨集、NEDO(2001)
- 2-4
- (1) (2-3(1)と同じ)
- (2) 平成13年度「高温形燃料電池発電技術」研究開発成果 報告会講演要旨集、NEDO(2002)
- (3) 同平成14年度(2003)
- 2-5
- (1) 渡辺、麦倉、阿部「電気事業における MCFC 導入の可 能性」W98514、電中研依頼研究報告(1999)

#### **第**3章

3-1

- T.G.Benjamin, E.H.Camara, and L.G.Marianowski,
  "Handbook of Fuel Cell Performance" Institute of Gas Technology, U.S. DOE Report, EC-77-C-03-1545 (1980)
- (2) C.Y.Yuh and J.R.Selman "The Polarization of Molten Carbonate Fuel Cell Electrodes I. Analysis of Steady-State Polarization Data" J.Electrochem. Soc., Vol.138, pp3642-3648 (1991)
- (3) 麦倉、阿部、渡辺、伊崎「溶融炭酸塩型燃料電池の性 能評価Ⅱ.性能相関式の開発」電気化学および工業物 理化学、60巻、2号、pp124-130(1992)
- (4) 内田、仁科「溶融アルカリ炭酸塩中の水素および酸素 ガス電極反応」日本化学会誌、Vol.8、pp1297-1307 (1988)
- (5) 仁科、内田「溶融炭酸塩形燃料電池のガス電極反応」 表面、Vol.27、pp843-856(1989)
- (6) 森田、麦倉、伊崎、渡辺、阿部 「溶融炭酸塩型燃料電

池の性能評価 IV.カソード反応論に基づく性能表示式 の高精度化」電気化学および工業物理化学、63巻、11 号、pp1053-1060(1995)

- (7) 森田、麦倉、伊崎、渡辺、阿部「溶融炭酸塩型燃料電 池の性能評価V.アノード反応抵抗表示式の導出」電 気化学および工業物理化学、65巻、9号、pp740-746、 (1997)
- (8) 森田、麦倉、伊崎、渡辺「小型単セルを用いた溶融炭 酸塩型燃料電池の寿命特性式」電気学会論文誌 B、 Vol.120-B、pp1112-1118(2000)
- (9) 吉葉、阿部、曹、渡辺「MCFCスタック内部解析手法の研究 並行流型スタックの解析 」日本機械学会論 文誌 B、63巻、606 号、pp675-682(1997)
- (10) F.Yoshiba, N.Ono, Y.Izaki, T.Watanabe, T.Abe
  "Analytic Investigation of the Internal Condition of an MCFC stack " Journal of Power Sources 71, pp328-336, 1998-3
- (11) F. Yoshiba, T. Abe, T. Watanabe "Numerical analysis of molten carbonate fuel cell stack performance : diagnosis of internal conditions using cell voltage profiles "Journal of Power Sources, Vol.87 pp21-27 (2000)
- (12) F.Yoshiba, H.Morita, M.Yoshikawa, Y.Mugikura, Y.Izaki, T.Watanabe, M.Komoda, Y.Masuda, N.Zaima, "Improvement of electricity generating performance and life expectancy of MCFC stack by applying Li/Na carbonate electrolyte Test results and analysis 0.44m<sup>2</sup>/10kW- and 1.03m<sup>2</sup>/10kW-class stack "Journal of Power Sources, Vol 128, 2, pp152-164 (2004)
- 3-2
- (1) 吉葉、吉川、森田、阿部、山口、岩本「Li/Na系電解 質 MCFCカソードガス分圧依存性」第62回電気化学協 会大会、307、p85(1995)
- (2) 吉川、吉葉、森田、阿部、山口、岩本「加圧雰囲気に おける Li/Na 系電解質を用いた MCFC の特性評価」第 2回燃料電池シンポジウム、FCDIC、B4-5、pp289-293 (1995)
- (3) 吉川、森田、麦倉「Li/Na系電解質を用いた MCFCの 温度特性について」第37回電池討論会、2B06、 pp277-278(1996)
- (4) 山賀、黒江、岩本、山口、加茂、吉川、吉葉、渡辺「Li/Na系電解質板を用いた小型単セルの特性評価(2)」第37回電池討論会、2B18、pp301-302(1996)
- (5) M. Yoshikawa, Y. Mugikura, T. Watanabe, T. Ohta and A. Suzuki "The Behavior of MCFCs Using Li/K and Li/Na Carbonates as the Electrolyte at High Pressure "J. Electrochem. Soc., 146, No.8, pp2834-2840 (1999)
- (6) H. Morita, M. Komoda, Y. Mugikura, Y. Izaki, T. Watanabe, Y. Masuda and T. Matsuyama "Performance analysis of molten carbonate fuel cell using a Li/Na electrolyte "Journal of Power Sources, Vol.112 pp509-518 (2002)

- (7) M. Yoshikawa, Y. Mugikura, T. Watanabe, T. Kahara and T. Mizukami, "NiO Cathode Dissolution and Ni Precipitation in Li/Na Molten Carbonate Fuel Cells -Distribution of Ni Particles in the Matrix "J. Electrochem. Soc., Vol.148, No.11, pp1230-1238 (2001)
- (8) 浅野、河瀬、吉葉、麦倉、伊崎、渡辺「MCFCの寿命
  に及ぼすニッケル短絡抑制効果」第44回電池討論会、 3E03、pp682-683(2003)
- 3-3
- (1) Y. Izaki, T. Watanabe, Y. Mugikura, T. Hamamatsu
  "Experimental Results of a 10kW Class Molten Carbonate Fuel Cell " IECEC, No.899306, p1523 (1989)
- (2) 渡辺、伊崎、麦倉、堀内、阿部、浜松、石川「溶融炭 酸塩型燃料電池 10kW 級発電システムの開発」火力原 子力発電、41巻、8号、p1027-1034(1989)
- (3) 渡辺、伊崎、麦倉、阿部、浜松、石川「溶融炭酸塩型 燃料電池発電技術の開発 - 10kW級電池システムの開 発 - 」日本機械学会論文集(B編)57巻、535号、 No.90-0882B、pp831-836(1991)
- (4) 伊崎、渡辺、阿部、遠井、松山、保坂「100kW 級溶融
  炭酸塩型燃料電池スタックの発電特性」日本機械学会
  論文集B、61巻、592号、pp4477-4482(1995)
- (5)伊崎、麦倉、渡辺、阿部、幸田、佐藤、保坂、松山、 清水、近藤「平行流内部マニホールドMCFCスタック の開発と運転試験・評価技術」電中研総合報告W11 (1998)
- (6)伊崎、渡辺「溶融炭酸塩型燃料電池発電システム運転 制御法の基礎検討 - 加圧試験装置の開発 - 」電中研報 告 T87067(1988)
- (7) C.Yuh, R.Johnsen, M.Farooque and H.Maru
  "Carbonate Fuel Cell Endureance: Hardware Corrosion and Electrolyte Management Status"
   Proceeding of the second international symposium on Carbonate Fuel Cell Technology, Electrochem. Soc., vol.93-3, pp158-170 (1993)

#### **第**4章

4-1

- (1) T.Kivisaari, D.Jansen, A.deGroot, C.Sylwan "Feasibility study of a coal- fired high- temperature fuel cell system "Fuel Cell Seminar Abstracts, pp570-573, (2000)
- (2) R.M.Reinstrom "CARBONATE FUEL CELL POWER PLANT SYSTEMS "IEEE, Vol.PAS-100, No.12, pp4752-4759 (1981)
- (3) T.L.Bonds, M.H.Dawes, A.W.Shenacke "MOLTEN CARBONATE FUEL CELL BASED COAL FIRED POWER PLANTS FOR ELECTRIC POWER GENERATION "American Chemical Society, 8412-0513-2 /79 /0779 -116 (1979)
- (4) 幸田、森塚、渡辺、阿部「石炭ガス化 MCFC 複合発電
  システムの性能解析 最適システム構成の検討 」電
  中研報告 W92045 (1993)

- (5) 長崎、鈴木、幸田、上田「石炭ガス化MCFC発電シ ステムの概念設計研究」日本機械学会第5回動力エネ ルギー技術シンポジウムA27, pp168-173 (1996)
- (6) 長崎、木田、辻口「燃料電池用石炭ガス化製造技術 (EAGLE)パイロットプラントの計画」日本機械学会 第6回動力エネルギー技術シンポジウムA107、pp39-44(1998)
- (7) 河瀬、麦倉、伊崎、渡辺、福田「MCFC特性に対する H<sub>2</sub>Sの影響I.出力電圧とセル内ガス組成の変化」 電 気化学および工業物理化学、66巻、4号、pp449-455 (1998)
- (8) 吉葉、伊崎、渡辺「石炭ガス化 MCFC 発電システムの 検討(実電池発電限界を反映したシステム検討とその 性能解析)」日本機械学会論文集(B編),69巻、677号、 pp148-154(2003)
- (9) 吉葉、麦倉、伊崎、渡辺、奥田、荒井、渡辺、久野、 松山「多様な燃料を用いた10kW級MCFCスタックの 発電特性」第10回燃料電池シンポジウム、FCDIC、 pp186-191(2003)
- (10) F. Yoshiba, Y. Mugikura, Y. Izaki, T. Watanabe, T. Okuda, Y. Arai, M. Watanabe, Y. Kuno, and T. Matsuyama "Electricity Generating 10kW-Class MCFC Stack Performance Fueled By Various Gas Compositions, "Proceedings of the International Conference on Power Engineering-03 (ICOPE-03), F204, pp2/445-2/450 (2003)
- 4-2
- (1)(4-1(7)と同じ)
- (2) 河瀬、麦倉、伊崎、渡辺「MCFC特性に対するH<sub>2</sub>Sの 影響II.電池内での硫黄成分の挙動 - 」Electrochemistry、67巻、4号、pp364-371(1999)
- (3) 河瀬、麦倉、伊崎「バイオマス燃料電池等における MCFCの不純物耐久性」第10回燃料電池シンボジウム、 FCDIC、pp182-185(2003)
- M. Kawase, Y. Mugikura, T. Watanabe, Y. Hiraga, T. Ujihara "Effects of NH<sub>3</sub> and NOx on the Performance of MCFCs " Journal of Power Sources Vol.104, pp265-271 (2002)
- 4-3
- (1)「石炭ガス化複合発電の実現に向けて-実証機開発の 支援と将来への研究展開-」電中研レビュー、No.44、
   (2001)
- (2) 布川、白井、野田、秋保、小林「高性能乾式脱硫技術の開発 亜鉛フェライト系脱硫剤の長期性能評価 」
  電中研報告 W01030 (2002)
- (3) 布川、白井「高性能乾式脱硫技術の開発 ハニカム状 亜鉛フェライト系脱硫剤の脱硫・再生特性の把握 - 」 電中研報告W02010(2003)
- (4) 白井「石炭ガス化ガスにおける固定床乾式脱硫技術の 開発」粉体工学会誌 Vol.40、No.8、pp582-590(2003)
- (5) H.Shirai, M.Kobayashi, M. Nunokawa "Thermal Efficiencies of IG-MCFC Systems with Different Types of Coal Gasifier and Coal Gas Clean Up

System " The 4th International World Energy System Conference, B372, pp427-432 ( 2002 )

#### 4-4

- (1)(4-1(1)と同じ)
- (2)(4-1(2)と同じ)
- (3)(4-1(3)と同じ)
- (4)(4-1(4)と同じ)
- (5)(4-1(5)と同じ)
- (6)(4-1(6)と同じ)
- (7) K.Itou, T. Shimizu and M. Iio, "Development of large scale MCFC power plant " 3<sup>rd</sup> IFCC proceedings, C4-4 pp313-316 (1999)
- (8) (2-3(1)と同じ)
- (9) (2-4(2)と同じ)
- (10)「燃料電池発電技術開発 溶融炭酸塩型燃料電池発電 技術開発(実用システムの経済性評価と概念設計) - 」 平成11年度 NEDO受託成果報告書(2000)
- (11) Y. Mugikura, K. Asano "Performance of Several Types of Fuel Cells and Factor Analysis of Performance "Electrical Engineering in Japan, Vol.138, No.1, pp24-33 (2002)
- (12) A.F. Massardo and B. Bosio "Assessment of Molten Carbonate Fuel Cell Models and Integration With Gas and Steam Cycles "Journal of Engineering for Gas Turbines and Power, ASME, Vol.124 pp103-109 (2002)
- (13) A.F. Massardo and F. Lubelli "Internal Reforming Solid Oxide Fuel Cell - Gas Turbine Combined Cycles (IRSOFC-GT): Part A- Cell Model and Cycle Thermodynamic Analysis "Journal of Engineering for Gas Turbines and Power, ASME, Vol.122, pp27-35, (2002)
- (14) H. Uechi, S. Kimijima, N. Kasagi "Cycle Analysis of Micro Gas Turbine - Solid Oxide Fuel Cell Hybrid System, "JSME,B, Vol.68, No.666, February, pp336-345 (2002)
- (15) J. Palsson, A. Selimovic and L. Sjunnesson "COMBINED SOLID OXIDE FUEL CELL AND GAS TURBINE SYSTEMS FOR EFFICIENT POWER AND HEAT GENERATION" the 3<sup>rd</sup> IFCC proceedings, D3-4, pp391-394 (1999)
- (16) S. Campanari "Full Load and Part-Load Performance Prediction for Integrated SOFC and Microturbine Systems "Journal of Engineering for Gas Turbines and Power, ASME, Vol.122, pp239-246 (2000)
- (17) P. Costamagna, L. Magistri, A.F. Massardo "Design and part-load performance of a hybrid system based on a solid oxide fuel cell reactor and a micro gas turbine "Journal of Power Sources, Vol.96 pp352-368 (2001)
- (18) S. Kimijima, N. Kasagi "PERFORMANCE EVALUA-TION OF GAS TURBINE - FUEL CELL HYBRID MICRO GENERATION SYSTEM " proceedings of ASME TURBO EXPO 2002 GT-2002-30111 (2002)

- (19) H. Yasue, K. Takatani "DEVELOPMENT OF 1000kW MCFC POWER PLANT " the 3<sup>rd</sup> IFCC proceedings, C2-1, pp251-255 (1999)
- (20)吉葉、伊崎、渡辺「広負荷域対応型 MCFC 発電システムの提案」電中研報告 W01031 (2002)

## **第**5章

#### 5-3

- (1)「燃料電池発電技術開発 溶融炭酸塩型燃料電池発電
  システムの研究開発(トータルシステムの研究)-」
  平成3年度 NEDO受託成果報告書(1992)
- (2) 同平成4年度(1993)
- (3) 同平成5年度(1994)
- (4) 幸田、阿部「外部改質型溶融炭酸塩型燃料電池発電の 概念設計と経済性」火力原子力発電 Vol.45, No.7 pp61-72 (1994)
- (5)「燃料電池発電技術開発 溶融炭酸塩型燃料電池発電
  システムの研究開発(トータルシステムの研究) 」
  平成8年度 NEDO受託成果報告書(1996)
- (6) 同平成9年度(1997)
- (7) 同平成10年度(1998)
- (8) 同平成11年度(1999)
- (9) (3-1(1)と同じ)
- (10)森田、麦倉、伊崎、渡辺、阿部「MCFC性能表示式の 高精度化 - その1カソード反応論に基づく性能表示式の
   の導出 - 」電中研究報告W94015(1995)
- (11)森田、麦倉、伊崎、渡辺、阿部「溶融炭酸塩型燃料電池の性能評価V.アノード反応抵抗表示式の導出」電気化学および工業物理化学、65巻、9号、pp740-746(1997)
- (12)(2-5(1)と同じ)
- (13)「燃料電池発電技術開発 溶融炭酸塩型燃料電池発電 技術開発(実用システムの経済性評価と概念設計) - 」 平成13年度 NEDO受託成果報告書(2002)
- (14)本藤ほか「ライフサイクルCO₂排出量による発電技術の評価 最新データによる再推計と前提条件の違いによる影響 」電中研報告 Y99009 (2000)
- (15)内山洋司「私たちのエネルギー 現在と未来」培風館 (1996)
- (16)「燃料電池発電技術開発 溶融炭酸塩型燃料電池発電 技術開発(実用システムの経済性評価と概念設計) - 」
   平成14年度 NEDO受託成果報告書(2003)
- (17) 佐藤、市川「都市部のコージェネレーションシステム から排出される窒素酸化物の大気環境濃度予測」電中 研報告 T02007 (2003)
- 5-4
- (1)「燃料電池発電技術開発 溶融炭酸塩型燃料電池発電 技術開発(実用システムの経済性評価と概念設計) - 」
   平成12年度NEDO受託成果報告書(2001)
- (2) 同13年度(5-3(13)と同じ)
- (3) 同14年度(5-3(16)と同じ)
- (4) 例えば日本コージェネレーションセンター「コージェ ネレーションシステム導入実績表」(各年度版)など
- (5) 今村、浅野「自家用発電設備の設置動向調査」電中研 報告 Y97018 (1998)

#### 付録

**付-**1

- (1) 森、阿部、渡辺「固体電解質型燃料電池複合発電シス テムの研究(第2報、構成が異なる発電システムの性 能解析)」日本機械学会論文集、66巻、652号、B編、 pp222-227(2000)
- (2) 森、渡辺、阿部「熱を併給する SOFC 発電システムの 性能検討」電中研報告 W97022 (1998)
- (3) 斉川、三巻、森塚、岩坪、長谷川(浩)、浜松、「コージェネレーション技術の現状と研究開発課題」電中研研究調査資料W89906(1989)
- (4) 森、「固体電解質型燃料電池の研究開発システム研究
  (システム研究)」平成9年度 NEDO受託研究成果報告
  (1998)
- 付-2
- (1) 伊藤、森、森、阿部「固体電解質型燃料電池の開発 各種 SOFC の製造コスト試算 」電中研報告 W92028
  (1993)
- (2) 伊藤、山本、森、阿部「SOFC用燃料極の高性能化に 関する研究 - カレント・インターラプション法による SOFCの劣化現象の解明 - 」電中研報告W93019 (1994)
- (3) 伊藤、山本、森、阿部「SOFC 燃料極の高性能化に関する研究 電極ミクロ構造の改良による長寿命化 」
  電中研報告 W94016(1995)
- (4) 森、伊藤、森、阿部「固体電解質燃料電池の開発 -110cm<sup>2</sup>級単セルの試作および発電試験結果 - 」電中研 報告W92013 (1993)
- (5) 森、渡辺「固体電解質型燃料電池発電技術の開発 平 板型単セルとセラミックスセパレータを用いた電池の 設計とその性能評価 」電中研報告 W99002 (1999)
- (6) 伊藤、山本「固体酸化物形燃料電池の性能評価平板型 セルによる実発電状態下での電池材料の適用性」電中 研報告W00043(2001)
- (7) 伊藤「支持膜型 SOFC の開発(その1) 単セルの試作と発電特性 」電中研報告 W99001 (1999)
- (8) 伊藤「固体電解質燃料電池材料の適正化研究 YSZ支 持型燃料極材料の混合比の適正化(1) - 」電中研報告

W99019 (2000)

- (9) 安本、山本、伊藤「電極支持形 SOFC スタックの研究
   インターコネクタ成膜法の開発と単位セルの発電特
  性 」電中研報告 W02008 (2003)
- (10)山本、森、伊藤、山本「SOFC構成材料の研究;電池 構成材料間の接合の研究(1) - 燃料極/セパレータ間 の接合材料の合成と基礎評価 - 」電中研報告 W97006 (1998)
- (11)山本、伊藤、森、森、阿部「雲母系ガラスセラミック スの SOFC 用ガスシール材としての適応性」電中研報 告 W94024 (1995)
- (12) 伊藤、安本、山本「燃料極支持形 SOFC スタックの研究 高出力密度、1,000 作動形全セラミックス製3セルスタックの作製 」電中研報告(2004)

#### 電中研「燃料電池発電技術研究」のあゆみ

- (1) 高橋武彦「燃料電池(第2版)」共立出版(1992)
- (2) 竹原善一朗監修「燃料電池技術とその応用」テクノシ ステムズ(2000)
- **コラム**2
- (1) 麦倉、森田「MCFC性能表示式の高精度化 電解質物 性値に基づくカソード性能推算手法の開発 - 」電中研 報告 W02023 (2003)
- コラム4
- (1) 吉川、麦倉、渡辺、太田、鈴木「高圧下におけるLi/K 系セルおよびLi/Na系セルの特性解析」電中研報告 W97009(1998)
- (2) 曽根、岸田、小林、渡辺「燃料電池発電プラントにおける炭素析出の抑制-(その1)ステンレス上における炭素析出反応機構の実験的検討-」電中研報告 W99003 (2000)
- (3) 白井、渡辺、曽根「燃料ガスからの炭素析出現象の解
  明(その1)ステンレス上での初期炭素析出特性」電
  中研報告 W00010 (2001)

**コラム**5

(1) (5-3(16)と同じ)

# 略語一覧

ACC	Advanced Combined Cycle
AGRE	Furgean Direct Fuel Cell Consortium
	A marican Public Power Association (半国心
AFFA	American Fubic Fower Association (木国公 中電力協会)
DON	兴电刀励云)
BCN	Brandstofel Nederland (Dutch Fuel Cell
	Corporation )
BOP	Balance of Plant ( 補機類 )
CEC	Commission of the European Communities
	(欧州共同委員会)
CHP	Combined Heat and Power ( 熱電併給 )
COP3	The 3rd Session of the Conference Of the
	Parties to the United Nations Framework
	Convention on Climate Change (第3回気候変
	動枠組み条約締結国会議)
DFC	Direct FuelCell
DOE	Department of Energy(米国エネルギー省)
ECN	Energy research Center of the Netherlands
ENEA	Ente per le Nuove tecnologie, l'Energia e
	I 'Ambiente (Italian National Agency for New
	Technologies, Energy and the Environment)
EPRI	Electric Power Research Institute (米国電力
	研究所)
ERC	Energy Research Co. (現 FCE 社)
ERDA	Energy Research and Development
	Administration(米国エネルギー研究開発局)
FCE	FuelCell Energy Co. (旧ERC)
GTI	Gas Technology Institute(GRIとIGTの合併
	により設立された研究所)
GRI	Gas Research Institute(米国ガス研究所、IGT
	と統合して現在GTI)
GTCC	Gas Turbine Combined Cycle(ガスタービン
	複合発電)
I.C.	Inter Connector
IFC	International Fuel Cells Co.
IG-MCFC	Integrated coal Gasification MCFC combined
	cycle(石炭ガス化複合 MCFC 発電)
	-

IGT	Institute of Gas Technology(米国ガス技術研 究所、GRIと統合して現在GTI)
IHI	Ishikawajima-Harima Heavy Industries Co., Ltd (石川島播磨重工業(株))
KEPRI	Korea Electric Power Research Institute (韓 国電力公社電力研究院)
KIST	Korea Institute of Science and Technology (韓国科学技術研究院)
LCA	Life Cycle Assessment (ライフ・サイクル・ アセスメント)
MCP	M-C Power Co.
МНІ	Mitsubishi Heavy Industries, Ltd. (三菱重工業株))
MOLB	MOno-block Layer Built(一体積層)
MOLCARE	Molten Carbonate Europe
MTU	Motoren und Turbinen Union Friedrichshafen
NEDO	New Energy Development Organization (新工 ネルギー・産業技術総合開発機構)
NETL	National Energy Technology Laboratory (米 国立エネルギー技術研究所)
NOMO	Notice of Market Opportunity (燃料電池市場 導入に関する公告)
PAC	Process And Control
PDI	Product Development and Improvement
PNGV	Partnership for a New Generation of Vehicles (新世代自動車に関する協力計画)
PURPA	Public Utility Regulatory Policies Act (公益事 業規制政策法)(米国)
RPS	Renewable Portfolio Standards
SECA	Solid state Energy Conversion Alliance
SPring-8	Super Photon ring-8 GeV
SWPC	Siemens Westinghouse Power Co. (旧WH社)
TARGET	Team to Advance Research for Gas Energy
	Transformation
UT	United Technologies Co.
WH(WE)	Westinghouse Electric Co. (現SWP社)
YSZ	Yttria Stabilized Zirconia (イットリア安定化 ジルコニア)
ZEV	Zero Emission Vehicle(無排出ガス車)
	-

既刊「電中研レビュー」ご案内 NO. 38「大気拡散予測手法」2000.3 NO.39「新時代に向けた電力システム技術」2000.6 NO. 40「原子燃料サイクルバックエンドの確立に向けて」2000. 11 NO.41「需要家と電気事業のエネルギーをトータルで考える 需要家の特性解明と省エネ技術 」2000.11 NO. 42「原子力発電所の人工島式海上立地」2001.1 NO. 43「酸性雨の総合評価」2001.2 NO.44「石炭ガス化複合発電の実現に向けて 実証機開発の支援と将来への研究展開 」2001.10 NO. 45「地球温暖化の解明と抑制」2001.11 NO. 46「微粉炭火力発電技術の高度化 環境性の向上と発電コストの低減 」2002.11 NO. 47「商用周波磁界の生物影響研究」2002. 11 NO. 48「送電設備の風荷重・風応答評価技術」2003.2 NO.49「未利用地熱資源の開発に向けて 高温岩体発電への取り組み 12003.3 NO. 50「電気事業とIT 情報通信技術で変える・変わる」2003. 10

编集後記

電中研レビュー第51号「燃料電池発電技術(MCFC実 用化への挑戦)」をお届けします。

燃料電池は、分散電源のホープとして古くから期待さ れ、国のプロジェクトを初めとして当研究所などの多く の機関が、その実用化に挑戦してきました。中でも高温 型と呼ばれる溶融炭酸塩形燃料電池(MCFC)や固体酸 化物形燃料電池(SOFC)は、化石燃料の高効率利用に も貢献できることから、大型の火力発電代替用や分散電 源として大いに期待されています。

しかしながら、従来の回転機器による発電とは異なり、 電気化学反応によるために、電極の劣化をはじめとする、 今まで経験のない多くの課題に突き当たり、いくつかの 挫折を乗り越えて、研究開発を進めてきた経緯がありま す。 このレビューでは、MCFCを中心に、これらの困難を 克服して、実用に向かう過程を、成功事例だけでなく、 いかに克服してきたかについても紙幅を割きました。

MCFC実用化に向けた技術克服の歴史は、今、自動車 用や家庭用として話題となっている固体高分子形燃料電 池(PEFC)や、セラミックスを使ったSOFCの開発に も、大いに役立つものと考えます。

この電中研レビューが、燃料電池開発に携わる方々へ の参考となり、燃料電池に関心を持たれる方々には、技 術開発の素晴らしさのご理解に役立てればと存じます。

最後になりましたが、巻頭言をご執筆いただいた中部 電力株式会社常務取締役清水眞男様に、心より感謝を申 し上げますとともに、燃料電池が導入される万国博覧会 '愛'地球博のご成功をお祈り申し上げます。





平成16年 3 月25日

編集兼発行・財団法人 電力中央研究所 広報グループ 100・8126 東京都千代田区大手町1・6・1 [大手町ビル7階] (03)3201・6601(代表) E-mail:www-pc-ml@criepi.denken.or.jp http://criepi.denken.or.jp/ 印刷・株式会社 ユウワビジネス

本部 / 経済社会研究所 100.8126 東京都千代田区大	手町1・6・1 (03)3201・6601	我孫子研究所 270·11	94 千葉県我孫子市我孫子1646	(04)7182-1181
狛江研究所 / 情報研究所 / 原子力情報センター		横須賀研究所 240·019	96 神奈川県横須賀市長坂2·6·1	(0468)56-2121
ヒューマンファクター研究センター / 低線量放射線研究セン	ター / 事務センター 赤城試	験センター 371·0241	群馬県勢多郡宮城村苗ケ島2567	( 027 )283 · 2721
201·8511 東京都狛江市岩戸北2·11·1 (03)	480 - 2111	塩原実験場 329·2801	栃木県那須郡塩原町関谷1033	( 0287 )35-2048

